

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-163063

(43)Date of publication of application : 10.06.1994

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 04-214481

(71)Applicant : INST OF GAS TECHNOL

(22)Date of filing : 02.07.1992

(72)Inventor : MARIANOWSKI LEONARD G

SCHORA FRANK C

PETRI RANDY J

LAWSON MARK G

(30)Priority

Priority number : 91 724422

Priority date : 02.07.1991

Priority country : US

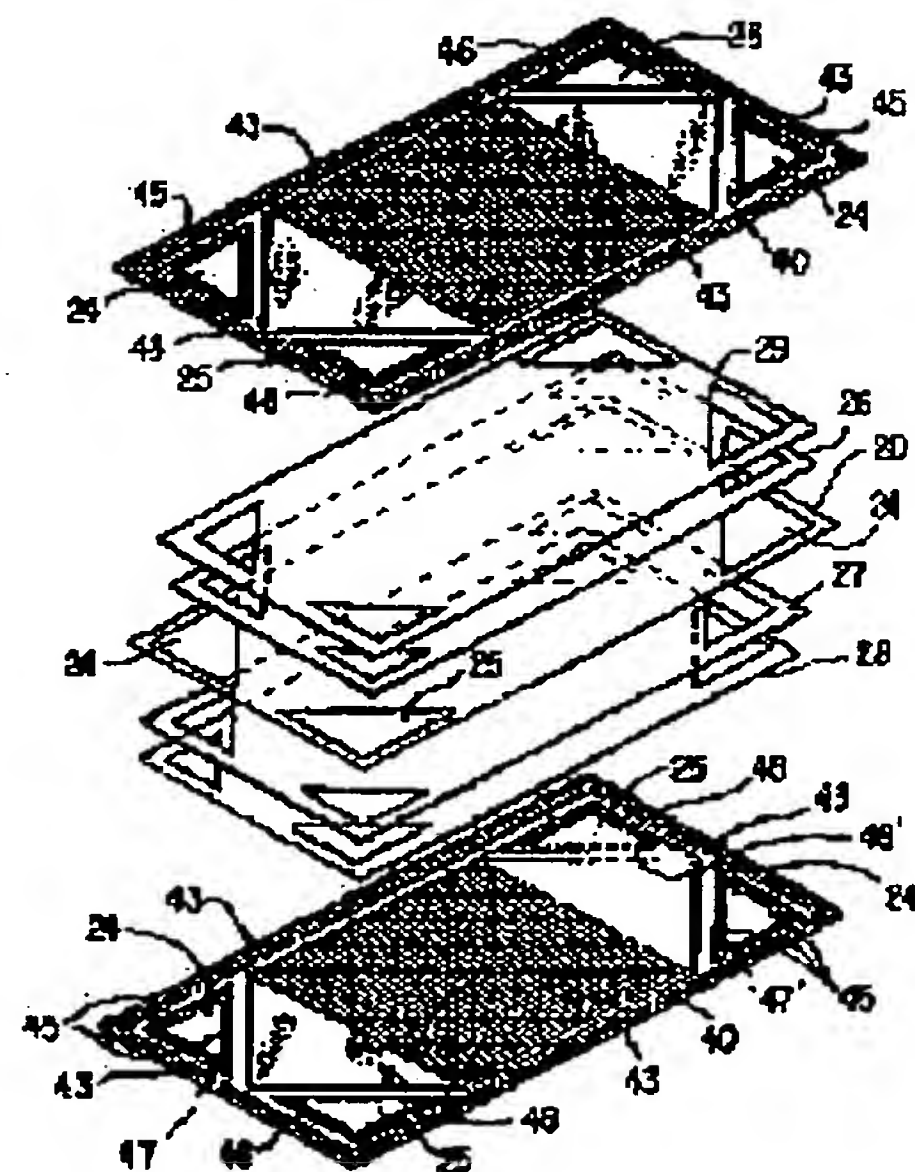
## (54) FUEL CELL STACK FITTED WITH PERFECT INTERNAL MANIFOLD

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To perfectly seal a gas passage from another gas passage, by forming on one surface, by the use of a press, a whole peripheral part and a manifold seal structure having a metallic upright seal structure.

**CONSTITUTION:** A separator plate 40, electrodes 26, 27, current collecting bodies 28, 29, and an electrolyte extend as far as a cell circumferential part, and a wet seal is formed on both surfaces of the plate 40. The plate 40, the electrodes 26, 27, the current collecting bodies 28, 29, and the electrolyte tile 20 are each equipped with manifold holes 24 for fuel and manifold holes 25 for oxidant in corresponding positions. The oxidant manifold holes 25 are sealed by the oxidation manifold wet seals 45.

Meanwhile, the fuel manifold holes 24 are sealed by the fuel manifold wet seals 45, and these seals 45 cause a fuel stream to flow only into an anode chamber and to flow out of the anode chamber. These seals 45 form a twofold wet seal.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 09.10.1997

[Date of sending the examiner's decision]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-163063

(43)公開日 平成 6 年(1994) 6 月10日

(51)IntCl.<sup>5</sup>

H 0 1 M 8/02

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

S 8821-4K

B 8821-4K

R 8821-4K

審査請求 未請求 請求項の数38(全 17 頁)

(21)出願番号 特願平4-214481

(22)出願日 平成 4 年(1992) 7 月 2 日

(31)優先権主張番号 7 2 4 4 2 2

(32)優先日 1991年 7 月 2 日

(33)優先権主張国 米国 (U S)

(71)出願人 591002016

インスティテュート・オブ・ガス・テクノ  
ロジー

INSTITUTE OF GAS TE  
CHNOLOGY

アメリカ合衆国イリノイ州60616, シカゴ,  
サウス・ステート・ストリート 3424

(72)発明者 レナード・ジー・マリアノウスキ

アメリカ合衆国イリノイ州60056, マウン  
ト・プロスペクト, サウス・エルムハース  
ト・ロード 507

(74)代理人 弁理士 湯浅 恭三 (外 6 名)

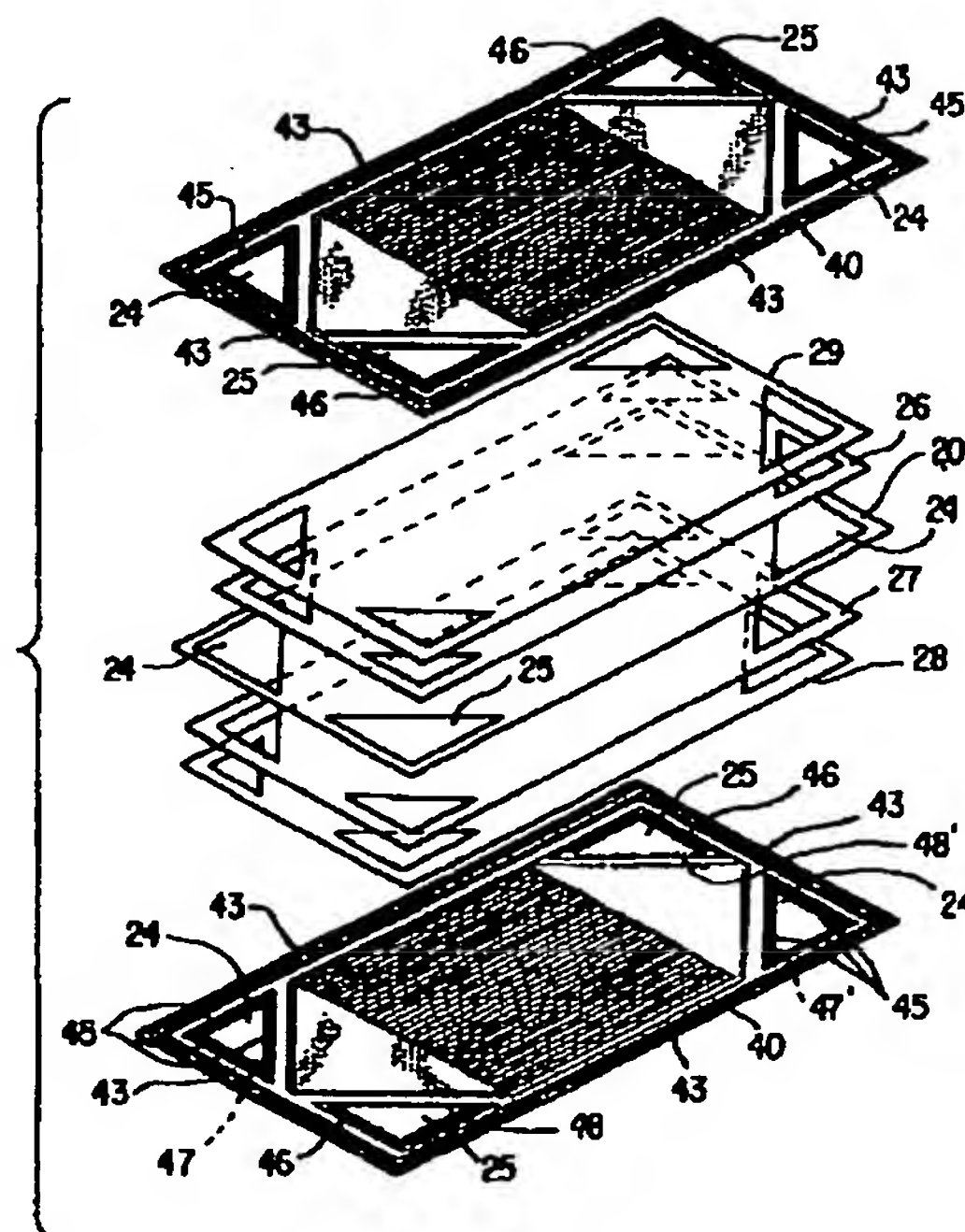
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 完全内部マニホールド付き燃料電池スタック

(57)【要約】 (修正有)

【目的】高温溶融カーボネート燃料電池スタックの提  
供。

【構成】伸長したマニホールドウエットシール構造を貫  
通する導管は、セパレータープレート 40 の一つの面の  
マニホールドとアノード室との第一の組の間でガスの連  
絡を付与し、セパレータープレートの反対面の伸長した  
マニホールドウエットシール構造を貫通する導管は、セ  
パレータープレートの他の面のマニホールドとカソード  
室との第二の組の間でガスの連絡を付与し、反応物ガス  
マニホールドの伸長したマニホールド構造を貫通する導  
管は、散在したリホーミング室に連絡を付与し、薄い金  
属プレートから形成される伸長したウエットシール構造  
は柔軟性とレジリエンスに制限を与え、良好なシーリン  
グを確実にする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池単位を含んで成る燃料電池スタックにして、

各燃料電池単位はアノードとカソード；該アノードの電解質に面する面と1側面で接触し、かつ該カソードの電解質に面する面と反対側の側面で接触している電解質；及び該燃料電池単位をアノードとカソードとの間で分離するセバレーター板にして該セバレーター板のアノードに面する面と該アノードとの間にアノード室を形成し、かつ該セバレーター板のカソードに面する反対側の面と、1つの隣接する該燃料電池単位のカソードのセバレーターに面する面との間にカソード室を形成する該セバレーター板を含んで成り、

該アノード室は燃料ガスを供給、流出させることができるように気体連通されており、そして該カソード室はオキシダントガスを供給、流出されることできるように気体連通されている該燃料電池スタックにおいて、

該電解質と該セバレーター板が該燃料電池スタックの周辺端縁まで延在しており；該セバレーター板は、それらセバレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在し、それらの周辺を完全に取囲んで、運転条件下で約1インチ幅より狭いセバレーター板／電解質ウェットシールを形成している平らにされた周辺ウェットシール構造体を有し；該電解質と該セバレーター板とは各々複数の整列された穴を有し、該セバレーター板の該穴は、該電池スタックを通して延在する複数のガスマニホールドを形成するように電池の運転条件下で約1インチ幅未満のセバレーター板／電解質ウェットシールを形成している、該セバレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在している平らにされたマニホールドウェットシール構造体で包囲されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が1組の該マニホールドと該アノード室との間で該セバレーター板の1つの面上において燃料ガスを連通させるようになっており；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が該マニホールドの第2の組と該カソード室との間で該セバレーター板の他の面上においてオキシダントガスを連通させるようになっており；それによって燃料ガスとオキシダントガスとを該燃料電池スタック中の該各単位燃料電池に及び該各単位燃料電池から完全に内部マニホールドするようになっている；ことを特徴とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタックの端板が該セバレーター板とそれらの内面上で同じに適合され、該燃料電池スタックの各端部上で半電池を形成している請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 該燃料電池スタックにその軸に沿って、2枚のセバレーター／リホーマー板で各々形成されている複数のリホーミング室が所定間隔で配置されており；1つのセバレーター／リホーマー板は該アノード室の該

セバレーター板に面する面の該アノードに面する面の形状を有し、第2のセバレーター／リホーマー板は該カソード室の該セバレーター板に面する面の該カソードに面する面の形状を有し；2枚の該セバレーター／リホーマー板はそれらの端縁領域においてリホーマー室を取り囲むように接合、封止されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が反応ガスとスチームを第3の組の該マニホールドから該リホーマー室に連通させ；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が水素に富む生成ガスを燃料ガス供給マニホールドに連通させ；それによって反応ガスとスチームを該燃料電池スタック中の各該リホーマー単位に、また生成ガスを各該リホーマー単位から完全に内部マニホールドするようになっている請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 該セバレーター板と該セバレーター／リホーマー板が厚さ約0.010～0.050インチのプレス成型された金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 該セバレーター板と該セバレーター／リホーマー板の1つの面上の平らにされた該周辺ウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在周辺ウェットシールを形成するように該板のプレス成型体（shaping）を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在周辺ウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体（shape）を含んで成る、請求項4に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 該板の1つの面上の該延在マニホールドウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在マニホールドウェットシールを形成するように該板のプレス成型体を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在マニホールドウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体を含んで成る、請求項5に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 該リホーマー室に約5～約10個の隣接する燃料電池単位の群が所定間隔で配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 前記セバレーター及びセバレーター／リホーマーのプレートが、約0.010～約0.050インチの厚さのプレスされた金属プレートである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウェットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウェットシールを成形しているプレスされた板金の



形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレート1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 前記ウエットシールの幅が約1/4〜3/4インチである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セパレータープレートがニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 前記電解質が1種類の固体イオン導体／固体オキシドの化合物を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属カーボネートを含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 前記電解質がカーボネートタイプ及びマトリックスタイプの形態で前記燃料電池スタックに組み入れられている請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含み、前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セパレータープレートとの間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 複数の燃料電池ユニットからなり；各燃料電池ユニットがアノード及びカソード、そのアノード

ドの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池ユニット同志を分離してそのセパレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットのカソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成するセパレーター板からなり；そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて；それらの電解質、アノード、カソード及びセパレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、

セパレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周辺ウエットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成し、

電解質、アノード、カソード及びセパレーター板はそれぞれ複数の整列したパーホレーションを有し、

セパレーター板のそれらのパーホレーションは、セパレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の一組のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからなる改良。

【請求項19】 請求項18記載の燃料電池スタックにおいて、電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている燃料電池スタック。

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに對面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板

はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【請求項21】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セバレーター板及びセバレーター／リホーマー板は約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である燃料電池スタック。

【請求項22】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セバレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造は、その板のその一方の面上に前記延在周囲ウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そしてその板の他方の面においては該板のその他方の面に固着された延在周囲ウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項23】 請求項22記載の燃料電池スタックにおいて、該板の一方の面上に延在するマニホールドウエットシール構造は、該板の該一方の面上に前記延在マニホールドウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そして該板の他方の面においては該板の他方の面に固着された延在マニホールドウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池ユニットからなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【請求項25】 セバレータープレートが約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項26】 セバレータープレートの1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セバレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セバレータープレートの加圧成型物からなり、および該セバレータープレートの他の面上では、該セバレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さの加圧シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項27】 ウエットシールの巾が約1/4～約3/4インチである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項28】 上記アノードに面した側のセバレータ

ープレートがニッケウおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【請求項29】 電極が固体イオン導体／固体酸化物化合物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項30】 電解質がアルカリ金属カルボン酸塩からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項31】 電解質がカーボネートテープおよびマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている請求項30の燃料電池スタック。

【請求項32】 セバレータープレートの1つの面上の偏平な周辺のウエットシール構造が、該セバレータープレートの1つの面上では、該セバレータープレートの上記1つの面上に該延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成するための該セバレータープレートの加圧成型物からなり、該セバレータープレートの他の面上では、該プレートは該セバレーターの上記他の面に固定された上記延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなり、該セバレータープレートの上記1つの面上の該延長したマニホールドウエットシール構造は、該セバレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セバレータープレートの加圧成型物からなり、および該セバレータープレートの他の面上では、該セバレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【請求項33】 上記集電装置が燃料電池スタックの周辺縁部にまで延びている請求項18の燃料電池スタック。

【請求項34】 アノード、セバレータープレート、およびカソードからなる燃料電池ユニット用サブアセンブリであって、

該燃料電池ユニットは上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延びるセバレータープレートを有し、該セバレータープレートは、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造を有し、上記あの一ど、上記カソード、および上記セバレータープレートは各々多数の整列した穿孔を有し、該セバレータープレートの穿孔は約1インチ未満の巾の、完全に該穿孔の周囲のセバレータープレートの各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通して上記マニホールドと上記セバレータープレートの1つの面上のアノードチャンバーとの間に流通させる導管および酸素ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セバレータープレートの他の面上のカソードチャンバーとの間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接



合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セバレータプレートおよび上記カソードにおける各ユニット燃料電池に、燃料ガスと酸素ガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【請求項35】 封止接合が溶接である請求項34のサブアセンブリー。

【請求項36】 セバレータプレートとウェットシール構造がウェットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010-約0.050インチであり、巾約1/4-約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セバレータプレートとの間にある請求項34のサブアセンブリー。

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延びている請求項37のサブアセンブリー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォームされた燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード／電流コレクター／セバレータプレート／電流コレクター／カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時該電解質と電極との間にウェットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセバレータプレートの設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター／固形酸化物燃料電池に適用できる。

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池電気発生ユニットは、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セバレータプレートによって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタックユニットをなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよび酸化ガスは双方とも、マニホールドを通して、セバレータプレートと電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスと酸化ガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および／または最小限にするため、ウェットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウェットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内およ

び結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましからぬ燃料ガスおよび／または酸化ガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の低下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセバレータプレートとして必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウェットシール領域における腐食と熱ストレスの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよび酸化ガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーム用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【従来の技術】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、分離用板は、各々が1セットの分離用板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料は分離用板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントは分離用板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニフォールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニフォールド及び出力マニフォールドに開かれていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニフォールドと電池スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾度に沿ってガスケット内でカーボネートの吸入排出を防止している間、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタックの界面において十分なガスシールを維持するために重大な問題が存在する。電池スタックから金属マニフォールドを絶縁するためのさ

さまざまな組み合わせが使用されてきたが、高温熔融カーボネートの燃料電池操作条件下においてはカーボネートが浸透できないにもかかわらず、ガス密封のスライディングシールを提供すること及び電氣的に絶縁することは困難であり、満足の行く解決は見いだせなかった。マニフォールディング及びシールディングの問題は、多数の電池及び広い平面積を電池スタックに使用する場合、より厳密になる。大多数の電池を使用する場合は、スタックの高さに沿ったシール領域内でカーボネートを動かす電位が増加し、そして電池の平面積が増加する場合は、各成分の線状許容量及び各成分の側面配列は、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタック間の表面のシールを維持するのが極端に困難になる。

【0006】600の電池を含むセルスタックス (cell stacks) は約10フィート (3.048メートル) もの高さになり得るので、外部マニホールド (external manifolds) の剛性 (stiffness) が要求されること及びマニホールドをセルスタック (cell stack) 上に押圧するのに必要な締付力の使用といった重大な問題が生じる。セルアセンブリー (cell assembly) とセル操作条件との間の熱勾配、示差熱膨張 (differential thermal expansion)、及びマニホールドに使用される材料の必要な強度のために、精密許容差及び非常に困難な工学的問題点が生じる。

【0007】従来は、個々の熔融カーボネート燃料電池は、分離板 (separator plate) の外面周囲にスペーサーストリップ (spacer strips) を設けてウェットシールを形成するとともに取入れ及び排出マニホールドを形成していた。高温燃料電池のウェットシール部分の環境における様々なシール手段は、以下の米国特許に開示されている。米国特許第4, 579, 788号はウェットシールストリップを粉末冶金技術を利用して製作することを教示している。米国特許第3, 723, 186号は、電解質自体がその周囲の領域にある不活性材料から成り当該電解質とフレーム若しくはハウジングとの間で不活性周辺シールを作っていることを教示している。米国特許第4, 160, 067号は、ウェットシール部分における燃料電池のハウジング若しくはセパレーター上への不活性材料の蒸着 (deposition)、又はこのいずれかに含浸された不活性材料の蒸着を教示している。米国特許第3, 867, 206号は、電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周辺縁端との間におけるウェットシールを教示している。米国特許第4, 761, 348号は、ガス不透過性材料の周辺レールによってガスシール機能を付与しオキシダント及び燃料ガスからアノードとカソードをそれぞれ隔離することを教示している。米国特許第4, 329, 403号は、電極から内部電解質領域への移動に

際し、熱膨張係数がより漸進的に変化する電解質組成物を教示している。米国特許第3, 514, 333号は、薄いアルミニウムのシール用ガスケットを用いた高温燃料電池におけるアルカリ金属カーボネートのハウジングを教示している。上記の特許をいずれも、燃料電池スタックにおける内部燃料とオキシダントの周囲のシールを扱ってはいない。

【0008】リン酸燃料電池 (約150℃ないし220℃で作動する) のガスシールを、電池の構成要素の多孔質材料周囲の細孔の炭化ケイ素及び／又は窒化ケイ素でふさぐことによって行うことが米国特許第4, 781, 727号に、また支持板縁端 (substrate plate edge) に透き間のある空間 (interstitial spaces) を設けることによって行うことが米国特許第4, 786, 568号および第4, 824, 739号に、それぞれ教示されている。燃料のみの内部マニホールディング (internal manifolding) について低温電解槽 (low temperature electrolytic cells) において直面するシール及び腐食の問題の解決、例えば、米国特許第4, 259, 389号に教示されている顆粒状不活性材料のポリテトラフルオロエチレンをもちいた接着、米国特許第3, 012, 086号に教示されているポリエチレンのガスケット、及び米国特許第3, 589, 941号に教示されている“O”リングシール等は、高温熔融カーボネート燃料電池に適しているとはいえない。

【0009】米国特許第4, 510, 213号は、電池ユニットの活性部分 (active portion) と取り囲んでいるトランジションフレーム (transition frame) によって個々の電池のガスコンパートメント (gas compartment) に燃料とオキシダントマニホールドを与え、当該マニホールドはセパレーターも当該電池の電解質タイル (electrolyte tile) も貫通しないことを教示している。このトランジションフレームは隣接する電池間で複雑な絶縁を必要とし、いくつかの独立した複雑な部分から成っている。米国特許第4, 708, 916号は、熔融カーボネート燃料電池に関する燃料の内部マニホールディング及びオキシダントの外部マニホールディングを教示している。上記熔融カーボネート燃料電池においては、何組かの燃料マニホールドが個々の電池の中央部分及び両未満にある電解質とセパレーターのみではなく電極をも貫通して、短縮された燃料用流路を形成している。末端の燃料マニホールドはセパレータープレート (separator plate) の厚い縁端壁面部 (edge wall area) にあり、一方、中央部の燃料マニホールドは厚い中央部領域を貫通しており、カーボネートで含浸されたシール用テープ又は独立した円筒状コンジットインサート (conduit insert) はカソードを貫通して延



長されている。

【0010】内部のマニホールド化は、電池の対向縁に沿った複数のマニホールド孔を用いたことにより燃料ガスとオキシダントガスとに並流又は向流を与えるように意図されていた。燃料用のこれらマニホールド孔は反対縁に沿った拡大された周辺ウェットシール領域中に配置されていたが、マニホールドは電解液の外部構造が複雑であり、少なくとも1つの電極を通過する。しかしながら、隣接するマニホールド孔は燃料用及びオキシダント用に使用され、これは短いウェットシートを横切る短い

通路、ガスの漏出を与え、更に必然的に拡大された周辺シール領域により電池の活性領域の好ましくない減少を与える。例えば、米国特許4,769,298を参照されたい。

【0011】同様に、内部マニホールド化の従来の試みでは、電池の4つの全ての縁のそれぞれに、拡大された周辺ウェットシール領域に沿って複数のマニホールド孔を用いた。しかしながら、前述の様に隣接する燃料及びオキシダント用マニホールド間の短い通路、同様な複雑な構造及び孔により、ガスの漏出を生じ、更に電池の活

性領域を減じた。

【0012】燃料としてガス化生成物を用いた場合、炭化水素成分を改質し、燃料電池スタック内の内部改質による燃料内の水素含量を増加することが好ましい。しかしながら、従来の改質触媒は、その活性サイトが炭酸塩の膜によって被覆されるため、熔融炭酸塩電解質により失活することが知られている。("Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell", Michael Tarjany, Lawrence Paetsch, Randolph Bernard, Hossin Ghezal-Ayagh, 1985, Fuel Cell Seminar, Tucson, Ariz, May 19-22, 1985, pp. 177-181, 参照)。

【0013】更に、熔融炭酸塩燃料電池の長期の耐久性を損なう別の問題点は、熔融炭酸塩電解質による多孔性アノード構造の変形、流体集積体、分離板等のようなアノード側のハードウェアの腐食、及びそれによる電解質の損失、及びアノードとカソードの溶解による多孔性アノードを通るガスのクロスオーバー、電解質の損失を生じることである。燃料電池に長期間の安定性及び耐久性を与えるために、これらの1または2以上の問題点を解決するための多くの試みがなされてきた。

【0014】燃料電池のアノード室への燃料供給流の水素含量を増加させることは、幾つかの特許に示されている。米国特許3,266,938には複数の高温燃料電池を連続的に配置し、それによって、連続配置中の第1の電池のアノード室からの排ガスを電池の外部で吸熱反応により接触改質して追加の水素を生産し、次いで配列中の第2のアノード室に通す。第2の燃料電池のアノード室の排ガスは電池の外部で接触発熱転換反応に付し、水素を生産し、配置中の第3の燃料電池のアノード室に供される。改質及び転換反応は燃料電池の外部で行わ

れ、燃料電池のアノード室への供給燃料により高含量の水素を与える。米国特許4,522,894では、接触酸化及び水蒸気改質により、液状炭化水素供給物の水素含量を増加することが教示されている。ここで、酸化によって生じる熱エネルギーは燃料電池外での改質に使用されており、燃料電池のアノード室への燃料供給流中に高い水素含量を与える。

【0015】米国特許3,488,226では、液状炭素水素の低温、低圧水蒸気改質により、熔融炭酸塩燃料電池のアノード室用の供給燃料中に水素を増加させることが教示されている。ここで、改質は燃料電池の外部で行われ、燃料電池で生じる熱の熱処理機能として作用する。1つの具体例としては、改質触媒は燃料電池のアノード室内に置くこともできる。また、たの具体例では、燃料電池からの廃熱は水素発生のための吸熱改質反応を維持するのに直接に使用する。米国特許4,702,973では、熔融炭酸塩燃料電池用の2室アノード構造が示されている。ここで、熔融炭酸塩電解質は、水素イオン透過性で電解質不透過性の金属箔によって、汚染された燃料ガス及び改質触媒から隔離される。

【0016】

【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば熔融カーボネートおよび固体導体/固体酸化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側上に接しおよびカソードの反対側上に接する電解質、ならびにひとつの電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離して分離板の片側とアノードの間にアノード容器を形成し、および分離板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離する分離板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、分離板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置および分離板は約同様の外寸を有することができ、燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。分離板は、平坦な末端シール構造を有し、これは分離板の平面から伸びて各分離板のフェイス上の集電装置および/または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、分離板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリーは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリーは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。



【0017】本発明はまた、燃料電池スタック内に炭化水素性(hydrocarbonaceous)燃料を再構成するための分離された容器を有する完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供でき、付加的な水素燃料を提供し吸熱再構成化反応のための熱エネルギーを引き出し、これによって燃料電池の発熱電気化学反応による加熱により必要とされる燃料電池スタックの所望する冷却を提供することができる。本発明は特に高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適し、電解質からの再構成化触媒の分離を提供し、これは熔融アルカリカーボネートの場合には容易に触媒の力を無くす。

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター・プレートが、一直線に並ぶ多数のバーホレーション(穿孔)を所望の位置に有している。各セパレーター・プレートの穿孔は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター・プレートの面から該セパレーター・プレートの各面上の集電装置および/または電極に接触するまで延びていて、セパレーター・プレート/集電装置および/または電極シールを形成し、それが各穿孔を囲んで各穿孔を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール(穴)は、燃料マニホールドとセパレーター・プレートの一面上にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール(穴)は、オキシダント・マニホールドとセパレーター・プレートの反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター・プレートへ同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分(コネクション)におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター・プレート、集

電装置、電極および電解質を通じて形成されている穿孔は、丸、正方形、長方形、三角形、または他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穿孔の各々は単一の穿孔として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ

(縁)を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター・プレートと集電装置および/または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター・プレートと集電装置および/または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係る分離板はプレスした薄い金属板であって、燃料電池の全作用領域に波状の部分および/またはくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレスによって形成されており、それによって、分離板と、分離板の対抗する両面上のコレクタまたは電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延長したシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード電流コレクタおよび/またはアノードがあり、反対側にカソード電流コレクタおよび/またはカソードがある分離板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【0021】好ましい実施例においては、マニホールドとアノード室とカソード室さらにはリフォーム室の間のガスの流通を与えるための、延長したマニホールドシール構造を通る導通路または穴は、適当な波状にした金属によって形成される開口であるか、あるいは薄板金属または棒状構造を通る穴であってよい。

【0022】本発明は一つのガス導通路を隣接するガス導通路から確実にシールするものであり、それによって高温および腐食性の燃料電池、例えば溶接炭酸塩燃料電池スタックからの、完全に内部でマニホールドしたガスの供給と除去を行うための有効な手段を与える。また本発明の構造を用いることによって、マルチ電池スタックに炭酸塩を供給するための有効で様々な手段も得られる。

【0023】本発明の構造はまた、燃料電池スタックの中に散在する完全内部マニホールドリフォーム室をも与えるものであり、それによってアノード室に高品質化した水素燃料を供給する炭酸水素燃料ガスがリフォームさ

れ、また一方では、リフォーム反応を進め、燃料電池スタックを冷却するための電気化学的に生成された熱エネルギーを有効に利用するものである。

【0024】本発明は燃料電池要素、特に分離板の半組み立て品、アノード電流コレクタおよび／又はアノード、およびカソード電流コレクタおよび／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明の半組み立て品の使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【0025】本発明はまた、内部リフォームを伴う完全内部マニホールド燃料電池スタックを使用する、特に熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池スタックを使用する電気生成方法を与えるものである。

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよび改造チャンバーを提供する電解液と接触するように伸長する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成される電解液とセパレータープレートとの間のウェットシールしたセパレータープレート中のくぼみに取り付けた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実地的なものにしている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料セルスタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレータープレートはそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺かその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレータープレートのくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレータープレート／

集電部／カソード集積ユニットのサブアセンブリーをより簡単かつ実的にしている。これらの要素のブレイクアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解液へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料セルスタックのアセンブリーをかなり機能的にしている。本発明では、セパレータープレートの一面から伸長する圧縮シール部とセパレータープレートの反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレータープレートを用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はフレキシビリティとレジリエンスを制限して密閉するものである。

【0028】本発明の燃料セルスタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスをセルスタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレータープレートとともにセルのエッジに伸長する電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレータープレートと電解液間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解液とセパレータープレートの間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行ってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解液とセパレータープレートとの間ではなくて電解液と電極との間のウェットシールを行う。

【0029】分離プレート、電解液タイル、電極及び電流コレクターにおける調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動するエンドプレートを通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様のエンドプレートを通して排出される。

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、分離プレート周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、



電解液タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【0031】各先願の図1に示されるように、電解液20及び分離プレート40は電池の外側端まで延びて、ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池ユニットはアノード26とともに示されており、そのアノードは分離プレート40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。分離プレート40の他面には、カソード27が分離プレート40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解液20及び分離プレート40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領域が電解液と流体封じ込め用の分離プレートとの間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解液／分離プレートウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、分離プレート40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガasketもシーリングのために使用されず、又この電池ユニットは炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適應することができる。

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシートセパレーター板40は、穿孔30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセパレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセパレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穿孔31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【0033】セパレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレーターシールストリップシール部分43とセパレーターシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解液と電極及び／又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複

がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解液の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかりと締められる時、セパレーター板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定することを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭素質材料や少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガasketはシールのために用いられることはなく、又該電池ユニットは炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適應できる。

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、セルエッジに向けて伸びている。そして、インターセルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前にセルをヒートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えばLiAlO<sub>2</sub>が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、セルの温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、溶融炭酸塩は多孔質LiAlO<sub>2</sub>、テープ及び電極に吸収される。内部セルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融してその間隔が減少するが、室温から作動温度である約650℃までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性

と張り性によって、セルのシールは更に確実となる。

【0036】図2は、本発明の一態様に従う熔融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池ユニットの斜視分解図である。図2において、40はセパレータプレート、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレータプレート40の両面においてウェットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウェットの周縁部全体にわたってウェットシール43が形成される。周縁部のウェットシール構造43は、セパレータプレート40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、セルの反応チャンバー中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウェットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウェットシール領域46は、セパレータプレート40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面において、集電体及び／又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウェットシールを形成する。なお、周縁部のウェットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通り分離板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウェットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウェットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示される

いる通り分離板の下方面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウェットシールはストレータプレスされたシート金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウェットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウェットシールを形成する。

【0038】分離板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。この分離板は望ましくは非常に薄く、約0.010～0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015～0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタル分離板を使用することが好ましく、第一鉄金属腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅は分離板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。分離板はタイプ300シリーズのステンレス鋼のような第一鉄合金から二次加工もまたできる。この分離板はガス室非反応性分離器を提供するのと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供するのとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガス的好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有する分離板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平な分離板にもまた適用できる。

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp.(1270 Avenue New York 100 20, NY)による刊行物"Modern Designs For Effective Heat Transfer"及びTranter Inc.(Wichita Falls, Texas 76307)による"Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger"で示される熱交換技術に利用されている。

これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスケット又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタック分離板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接する分離体の間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技



術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【0040】我々のセバレータプレートの両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレータプレートの実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレータプレートが示されている。図4に示されているセバレータプレートには4つの同様な繰返し領域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積のセル、例えば10,000cm<sup>2</sup>すなわち約34×57in<sup>2</sup>程度のセルとするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレータプレート240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノードチャンバーを通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダント供給用マニフォールド型孔225を通過してセバレータプレート240の反対側に供給され、そして、カソードチャンバーを通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様に、電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【0041】図3には、図2に示されたユニットセルを備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミングチャンバーが備えられている。リフォーミングチャンバーは、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"とカソードセバレータ／リフォーマプレート40'との間に設けられる。セバレータプレート40、カソード27、カソードコレクター28、電解液20、アノード26及びアノード集電装置29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51は、セバレータプレート40の一般的な(general)平から両方の面上に伸びており接触して電解液20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径はセルのそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領

域51の平らな面が一方の側で電解液20とカソード27及び／又はカソード集電装置28との間で接触をし、且つ、電解液20とアノード26及び／又はアノードコレクター29との間で接触をし、反応ガスのマニフォールドを囲うウェットシールを形成する。セバレータプレート中における伸びている反応ガス用マニフォールド型ウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノードチャンバー又はカソードチャンバーへの流入が阻止される。アノードセバレータ／リフォーマプレート40"は、セバレータプレート40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"の上面に近接したリフォーマーチャンバーはいずれのオキシダントマニフォールドとも連通していないという点においてのみセバレータプレート40と異なる。伸びている反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の側面における反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォールド50とリフォーマーチャンバーとを連通させる。同様に、カソードセバレータ／リフォーマプレート40'の下側は、伸びている古い燃料用マニフォールド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォールド24とリフォーマーチャンバーとの間をブロック連通させる。このとき、古い燃料用マニフォールド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォールド50とアノードセバレータ／リフォーマプレート40"とカソードセバレータ／リフォーマプレート40'との間に形成されているリフォーマーチャンバーとの間を連通させる。標準的なセバレータプレート40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォールド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応チャンバーは、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様に、セバレータ／リフォーマプレートを前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセバレータ／リフォーマプレートのサブアセンブリを形成してもよい。【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセバレータ／リフォーマー板40"のすべてのウェットシール領域はカソードセバレータ／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニフォールドを板40"と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する伸ばされたウェットシール領域をさらにセバレータ板40上まで伸ばし、セバレータ／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積をより大きくすることができる。所望の場合にリフ

ォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニホールドウエットシール領域と周囲のウエットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニホールドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する電流コレクターと電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前

【0043】軸方向に複数のリフォーミング室が散在する燃料電池スタックの基本的な構成は、それぞれのリフォーミング室が2つの離れたセパレーター／リフォーマー板により形成され、1つはアノード室に面したセパレーター板の面の外側に位置し、2つめはカソード室に面したセパレーター板の他方の面の外側に位置し、2つのセパレーター／リフォーマー板はそれらの端部分で密封した状態で接合され、リフォーマー室、伸ばされたマニホールドウエットシール構造を通る、反応ガス供給マニホールドとリフォーマー室とを連結する反応ガスと水蒸気の配管、および伸ばされたマニホールドウエットシール構造を通る、燃料ガス供給マニホールドとを連結する水素富化生成ガスの配管を囲い込み、反応ガス、水蒸気、および燃料電池のそれぞれのリフォーマー室からの生成ガスの完全な内部マニホールディングをもたらす。

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然で生じた有機炭化水素物質のガス化によって又は無気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応性炭化水素質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応性ガスマニホールド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニホールド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含有を高める。この方法において、その燃料供給マニホールドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニホールドする能力は、電気化学的ユニット燃料電池を所望により冷却しながらそして高められた水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニホールドに提供しながらそのリフォーム反応を実施するために電気化学的に発生した熱を利用す

るその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、溶融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素質物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホールドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5〜10の電気化学的ユニットセル間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的応用の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレートプレート配置に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応性ガスマニホールドとして内部マニホールドの或る種のものの消化によって広範囲なセパレートプレート配置に適用できる。本発明による内部リフォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてそのエンドプレート(end plate)を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応性ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【0048】電解質／電極及び／又は電流コレクターウエットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレタプレートのアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレタプレートの反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガasketなしに達成できる。その主要なウエットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を越えて伸びる電流コレクターと間に幾分かのウエットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレタプレートのシール区域間に幾分かのウエットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減んずるためにアルミニウム化できる。

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶融によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶融が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。改質チャンバーの高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシー



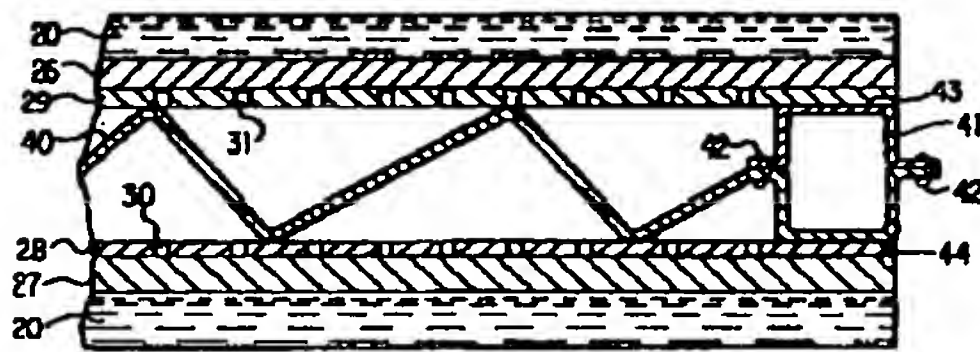
ル部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【0050】本発明の電池形状および電池スタックの利点を、主として熔融カーボネート電池質燃料電池に関して述べて来たが、これらは固体酸化物電解質における酸素イオン又は酸素空隙あるいはその双方の移動によって内部の電気的条件を与える固体導電体／固体電解質燃料電池その他の高温燃料電池に容易に応用することができる。イットリウムでドーピングしたジルコニア、酸化物イオンを伝導する様々なパーブスカイト化合物、および固体陽子導電体（例えばイッテルビウムでドーピングしたバリウム蠟膏）等の、多くの適当な固体酸化物電解質が知られている。本発明の燃料電池スタック形状は、特にこれらのタイプの固体導電体／固体酸化物燃料電池において有用である。

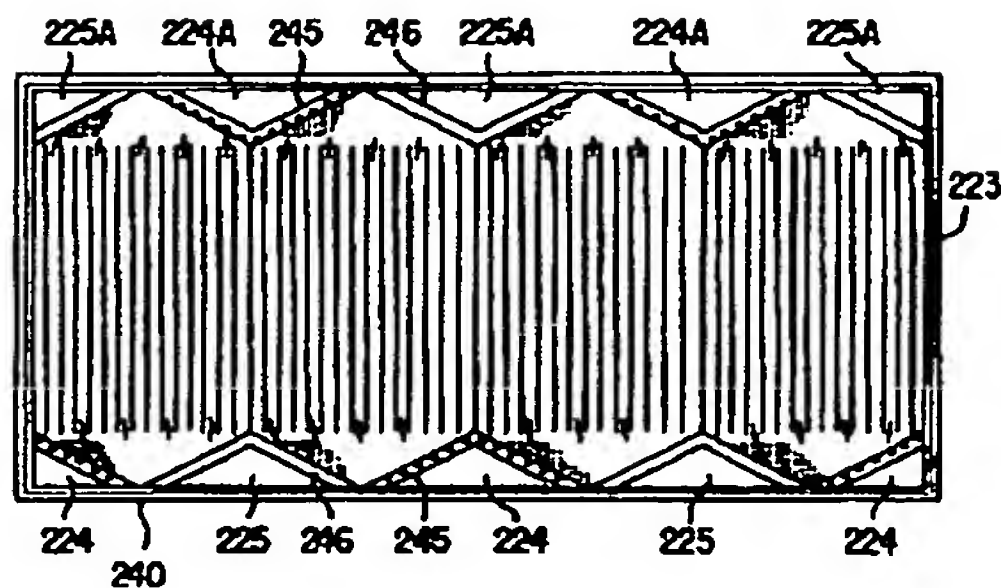
【0051】前述の明細書において本発明を一定の好ましい具体例と関連して述べ、例証のために多くの詳細を述べて来たが、当業者には、本発明に従ってさらに具体例を追加できることが明らかだろう。

\*

【図1】



【図4】



## \*【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一電池ユニットの分解斜視図である。

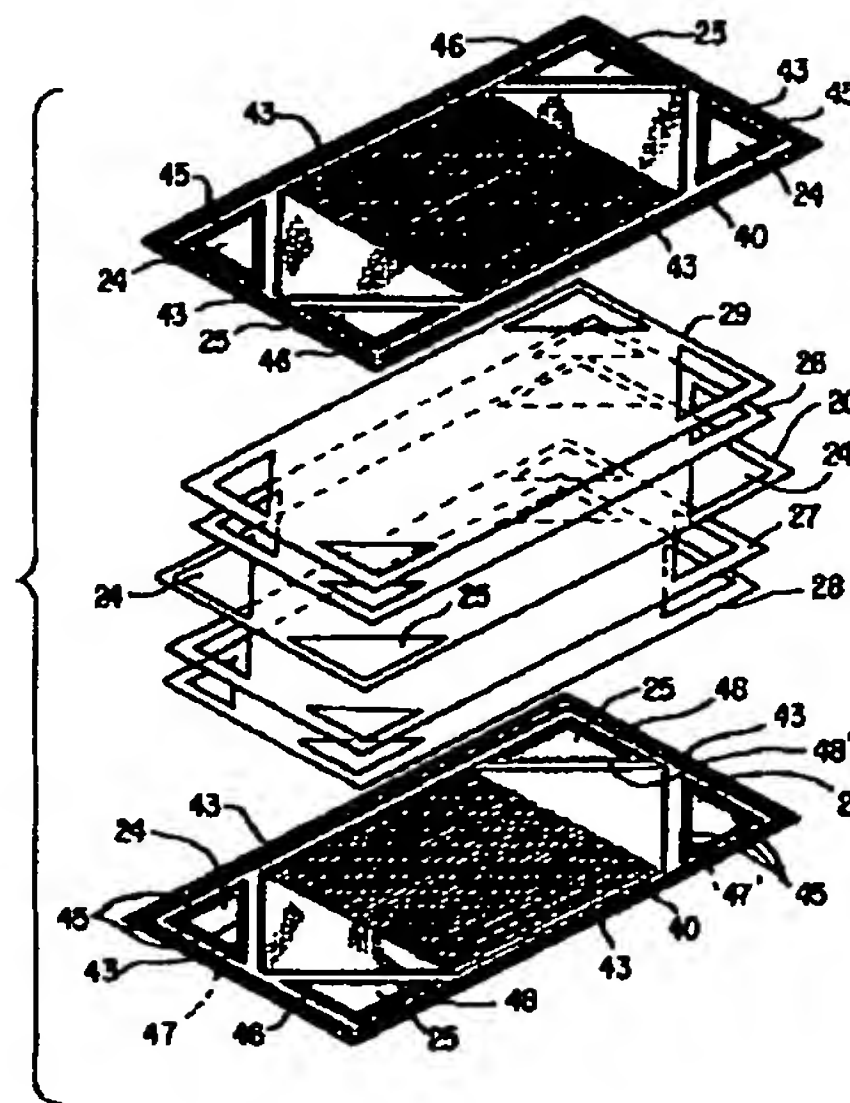
【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールドプレートの別の実施態様の正面図である。

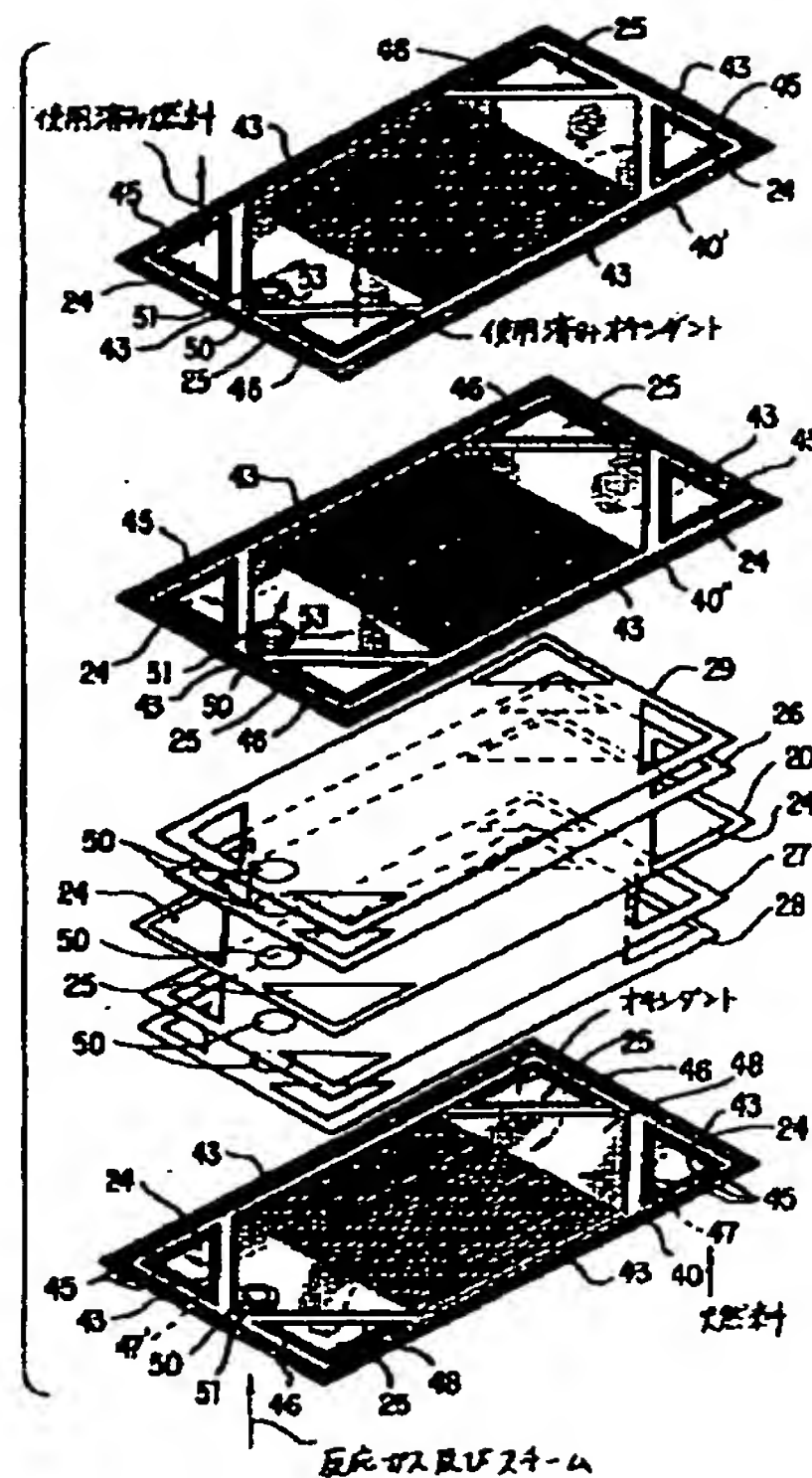
## 【符号の説明】

- 20 電解質
- 26 アノード
- 29 アノード集電体
- 40 セパーレータプレート
- 30, 31 孔
- 28 カソード集電体
- 27 カソード

【図2】



【図3】



## 【手続補正書】

【提出日】平成4年10月2日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池ユニットから成り；各燃料電池ユニットはアノード及びカソード、該アノードの電解質対向面と一方の面で接しかつ該カソードの電解質対向面と他方の面で接している電解質、並びにアノードとカソードとの間でそれら燃料電池ユニット同士を分離するセパレーター板にして、セパレーター板のアノード対向面と該アノードとの間にアノード室を形成すると共にセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットの該カソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り；該アノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通し、該カソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している燃料電池スタックにおいて：該電解質及び該セパレーター板は該燃料電池スタックの周縁領域

まで延在しており；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、それらの各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな周囲ウェットシール構造を有して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成しており；該電解質及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホールドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホールドウェットシールを形成して、該電池スタックを貫いて延在する複数の気体マニホールド、該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の第一の該マニホールドと該アノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二の該マニホールドの組と該カソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成し、それによって該燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与える；ことを改良点とする



前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 燃料電池スタックにその軸に沿って、それぞれが2つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーマー室が配置されており；該セパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の1つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そして該セパレーター／リホーマー板の他方はカソード室の1つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し；該2つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封接合されてリホーマー室、延在マニホルドウェットシール構造を貫いて第3のマニホルドの組から該リホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与える導管、並びに延在マニホルドウェットシール構造を貫いて燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成ガスの連通を与える導管を包囲しており、それによって燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応ガス及びスチームの、並びに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホルドシステムを与える、請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板が約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウェットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に延在周囲ウェットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在周囲ウェットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 セパレーター板の一方の面上の延在マニホルドウェットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に該延在マニホルドウェットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在マニホルドウェットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料電池ユニットから成る群の間に配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 セパレーター板が厚さ約0.010～約0.050インチのプレス加工金属板である、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 ウェットシールの幅が約1/4～約3/

4インチである、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 アノードに面する側のセパレーター板がニッケル及び銅から成る群より選択された金属で被覆又はクラッドされている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 電解質が固体イオン導体／固体酸化物化合物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 電解質がアルカリ金属カーボネートから成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 電解質がカーボネートテープ及びマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている、請求項12に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 アノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置されている、請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 集電装置が燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項15に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 平らな周囲ウェットシール構造がセパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して、電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 電解質、アノード、カソード、集電装置及びセパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウェットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項19】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在し；該アノード及び該カソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置され、該集電装置は燃料電池スタックの該周囲縁部領域まで延在し；平らな周囲ウェットシール構造が該セパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成しており；そして該電解質、該アノード、該カソード、該集電装置及び該セパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな該マニホルドウェットシール構造により取り囲

まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウェットシールを形成している、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項20】 アノード、セパレーター板及びカソードを含んで成る燃料電池ユニット用のサブアセンブリーにして、

該燃料電池ユニットは燃料電池スタックの縁部領域まで延在する該アノード、該カソード及び該セパレーター板を有し；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、その各面から延在する幅約1インチ未満の平らな周囲ウェットシール構造を有し；該アノード、該カソード及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該穿孔、該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組のマニホルドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二のマニホルドの組とカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管の周囲全体にわたって該セパレーター板の各面から延在する幅約1インチ未満の平ら\*

\*なマニホルドウェットシール構造により取り囲まれており、それによって燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホルドシステムを与え、かつ該アノード、該セパレーター板及び該カソードを各々の密封領域において密封接合している；前記サブアセンブリー。

【請求項21】 密封接合が溶接である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項22】 セパレーター板及びウェットシール構造が該ウェットシール構造の平らな部分において約0.010～約0.050インチの厚さで、かつ約1/4～約3/4インチの幅である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項23】 集電装置がアノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間にある、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項24】 集電装置が燃料電池スタックの縁部領域まで延在している、請求項23に記載のサブアセンブリー。

フロントページの続き

(72)発明者 フランク・シー・ショーラ  
アメリカ合衆国イリノイ州60067, バラティン, オールド・ブラム・グローブ・ロード 5500

(72)発明者 ランディー・ジェイ・ベトリ  
アメリカ合衆国インディアナ州46322, ハ일랜드, イーダー・ストリート 3223  
(72)発明者 マーク・ジー・ロウソン  
アメリカ合衆国イリノイ州60402, バーウィン, ケニルウォース・アベニュー 3644



【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第7部門第1区分  
 【発行日】平成11年(1999)4月9日

【公開番号】特開平6-163063  
 【公開日】平成6年(1994)6月10日  
 【年通号数】公開特許公報6-1631  
 【出願番号】特願平4-214481  
 【国際特許分類第6版】  
 H01M 8/02

【F I】  
 H01M 8/02 S  
 B  
 R

【手続補正書】  
 【提出日】平成4年10月2日  
 【手続補正1】  
 【補正対象書類名】明細書  
 【補正対象項目名】特許請求の範囲  
 【補正方法】変更  
 【補正内容】  
 【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池ユニットから成り；各燃料電池ユニットはアノード及びカソード、該アノードの電解質対向面と一方の面で接しかつ該カソードの電解質対向面と他方の面で接している電解質、並びにアノードとカソードとの間でそれら燃料電池ユニット同士を分離するセパレーター板にして、セパレーター板のアノード対向面と該アノードとの間にアノード室を形成すると共にセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットの該カソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り；該アノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通し、該カソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している燃料電池スタックにおいて；該電解質及び該セパレーター板は該燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、それらの各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな周囲ウェットシール構造を有して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成しており；該電解質及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウェットシールを形成して、該電池スタックを貫いて延在

する複数の気体マニホルド、該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組の該マニホルドと該アノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二の該マニホルドの組と該カソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成し、それによって該燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホルドシステムを与える；ことを改良点とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 燃料電池スタックにその軸に沿って、それぞれが2つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーマー室が配置されており；該セパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の1つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そして該セパレーター／リホーマー板の他方はカソード室の1つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し；該2つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封接合されてリホーマー室、延在マニホルドウェットシール構造を貫いて第3のマニホルドの組から該リホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与える導管、並びに延在マニホルドウェットシール構造を貫いて燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成ガスの連通を与える導管を包囲しており、それによって燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応ガス及びスチームの、並びに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホルドシステムを与える、請求

項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 セバレーター板及びセバレーター／リホーマー板が約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 セバレーター板の一方の面上の平らな周囲ウェットシール構造が該セバレーター板のその一方の面上に延在周囲ウェットシールを形成するような該セバレーター板のプレス加工形状物から成り、該セバレーター板のその他方の面においては該セバレーター板のその他方の面に固定された延在周囲ウェットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 セバレーター板の一方の面上の延在マニホルドウェットシール構造が該セバレーター板のその一方の面上に該延在マニホルドウェットシールを形成するような該セバレーター板のプレス加工形状物から成り、該セバレーター板のその他方の面においては該セバレーター板のその他方の面に固定された延在マニホルドウェットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料電池ユニットから成る群の間に配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 セバレーター板が厚さ約0.010～約0.050インチのプレス加工金属板である、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 ウェットシールの幅が約1/4～約3/4インチである、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 アノードに面する側のセバレーター板がニッケル及び銅から成る群より選択された金属で被覆又はクラッドされている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 電解質が固体イオン導体／固体酸化物化合物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 電解質がアルカリ金属カーボネートから成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 電解質がカーボネートテープ及びマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている、請求項12に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 アノード及びカソードの少なくとも一方とセバレーター板との間に集電装置が配置されている、請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 集電装置が燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項15に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 平らな周囲ウェットシール構造がセバ

レーター板の周囲全体にわたって、該セバレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して、電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 電解質、アノード、カソード、集電装置及びセバレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セバレーター板の穿孔は、該セバレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウェットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項19】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在し；該アノード及び該カソードの少なくとも一方とセバレーター板との間に集電装置が配置され、該集電装置は燃料電池スタックの該周囲縁部領域まで延在し；平らな周囲ウェットシール構造が該セバレーター板の周囲全体にわたって、該セバレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成しており；そして該電解質、該アノード、該カソード、該集電装置及び該セバレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セバレーター板の穿孔は、該セバレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな該マニホルドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウェットシールを形成している、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項20】 アノード、セバレーター板及びカソードを含んで成る燃料電池ユニット用のサブアセンブリーにして、該燃料電池ユニットは燃料電池スタックの縁部領域まで延在する該アノード、該カソード及び該セバレーター板を有し；該セバレーター板はそれらの周囲全体にわたって、その各面から延在する幅約1インチ未満の平らな周囲ウェットシール構造を有し；該アノード、該カソード及び該セバレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セバレーター板の穿孔は、該穿孔、該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セバレーター板の一方の面上の一組のマニホルドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウェットシール構造を貫通して該セバレーター板の他方の面上の第二のマニホルドの組とカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管の周囲全体にわたって該セバレーター板の各面から延在する幅約1インチ未満の平らなマニホルドウェットシール構造により取り囲まれており、それによって燃料電池スタック中の各ユニット燃料



電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与え、かつ該アノード、該セパレーター板及び該カソードを各々の密封領域において密封接合している；前記サブアセンブリー。

【請求項21】 密封接合が溶接である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項22】 セパレーター板及びウエットシール構造が該ウエットシール構造の平らな部分において約0. \*

\* 0.10～約0.050インチの厚さで、かつ約1/4～約3/4インチの幅である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項23】 集電装置がアノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間にある、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項24】 集電装置が燃料電池スタックの縁部領域まで延在している、請求項23に記載のサブアセンブリー。

#### 【手続補正書】

【提出日】平成5年11月18日

#### 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】 明細書

【発明の名称】 完全内部マニホールド付き燃料電池スタック

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池単位を含んで成る燃料電池スタックにして、

各燃料電池単位はアノードとカソード；該アノードの電解質に面する面と1側面で接触し、かつ該カソードの電解質に面する面と反対側の側面で接触している電解質；及び該燃料電池単位をアノードとカソードとの間で分離するセパレーター板にして該セパレーター板のアノードに面する面と該アノードとの間にアノード室を形成し、かつ該セパレーター板のカソードに面する反対側の面と、1つの隣接する該燃料電池単位のカソードのセパレーターに面する面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り、

該アノード室は燃料ガスを供給、流出させることができるように気体連通されており、そして該カソード室はオキシダントガスを供給、流出されることできるように気体連通されている該燃料電池スタックにおいて、該電解質と該セパレーター板が該燃料電池スタックの周辺端縁まで延在しており；該セパレーター板は、それらセパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在し、それらの周辺を完全に取り囲んで、運転条件下で約1インチ幅より狭いセパレーター板／電解質ウエットシールを形成している平らにされた周辺ウエットシール構造体を有し；該電解質と該セパレーター板とは各々複数の整列された穴を有し、該セパレーター板の該穴は、該電池スタックを通して延在する複数のガスマニホールドを形成するように電池の運転条件下で約1インチ幅未満のセパレーター板／電解質ウエットシールを形成している、該セパレーター板の各面上

で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在している平らにされたマニホールドウエットシール構造体で包囲されており；該延在マニホールドウエットシール構造体を通る導管が1組の該マニホールドと該アノード室との間で該セパレーター板の1つの面上において燃料ガスを連通させるようになっており；そして該延在マニホールドウエットシール構造体を通る導管が該マニホールドの第2の組と該カソード室との間で該セパレーター板の他の面上においてオキシダントガスを連通させるようになっており；それによって燃料ガスとオキシダントガスとを該燃料電池スタック中の該各单位燃料電池に及び該各单位燃料電池から完全に内部マニホールドするようになっており；ことを特徴とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタックの端板が該セパレーター板とそれらの内面上で同じに適合され、該燃料電池スタックの各端部上で半電池を形成している請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 該燃料電池スタックにその軸に沿って、2枚のセパレーター／リホーマー板で各々形成されている複数のリホーミング室が所定間隔で配置されており；1つのセパレーター／リホーマー板は該アノード室の該セパレーター板に面する面の該アノードに面する面の形状を有し、第2のセパレーター／リホーマー板は該カソード室の該セパレーター板に面する面の該カソードに面する面の形状を有し；2枚の該セパレーター／リホーマー板はそれらの端縁領域においてリホーマー室を取り囲むように接合、封止されており；該延在マニホールドウエットシール構造体を通る複数の導管が反応ガスとスチームを第3の組の該マニホールドから該リホーマー室に連通させ；そして該延在マニホールドウエットシール構造体を通る複数の導管が水素に富む生成ガスを燃料ガス供給マニホールドに連通させ；それによって反応ガスとスチームを該燃料電池スタック中の各該リホーマー単位に、また生成ガスを各該リホーマー単位から完全に内部マニホールドするようになっており；請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 該セパレーター板と該セパレーター／リホーマー板が厚さ約0.010～0.050インチのブ

レス成型された金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 該セバレーター板と該セバレーター／リホーマー板の1つの面上の平らにされた該周辺ウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在周辺ウェットシールを形成するように該板のプレス成型体（shaping）を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在周辺ウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体（shape）を含んで成る、請求項4に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 該板の1つの面上の該延在マニホールドウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在マニホールドウェットシールを形成するように該板のプレス成型体を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在マニホールドウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体を含んで成る、請求項5に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 該リホーマー室に約5～約10個の隣接する燃料電池単位の群が所定間隔で配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 前記セバレーター及びセバレーター／リホーマーのプレートが、約0.010～約0.050インチの厚さのプレスされた金属プレートである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウェットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウェットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウェットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウェットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウェットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 前記ウェットシールの幅が約1/4～3/4インチである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セバレータープレートがニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に

記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 前記電解質が1種類の固体イオン導体／固体オキシドの化合物を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属カーボネートを含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 前記電解質がカーボネートタイプ及びマトリックスタイプの形態で前記燃料電池スタックに組み入れられている請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウェットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウェットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含み、前記伸長されたマニホールドウェットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウェットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウェットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セバレータープレートとの間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 複数の燃料電池ユニットからなり；各燃料電池ユニットがアノード及びカソード、そのアノードの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池ユニット同志を分離してそのセバレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセバレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットのカソードのセバレーター対向面との間にカソード室を形成するセバレーター板からなり；そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて；それらの電解質、アノード、カソード及びセバレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、セバレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周囲ウェットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解



質ウエットシールを形成し、  
 電解質、アノード、カソード及びセパレーター板はそれぞれ複数の整列したパーホレーションを有し、  
 セパレーター板のそれらのパーホレーションは、セパレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の一组のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることとなる改良。

【請求項19】 請求項18記載の燃料電池スタックにおいて、電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている燃料電池スタック。

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに對面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【請求項21】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板は約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である燃料電池スタック。

【請求項22】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造は、その板のその一方の面上に前記延在

周囲ウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そしてその板の他方の面においては該板のその他方の面に固着された延在周囲ウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項23】 請求項22記載の燃料電池スタックにおいて、該板の一方の面上に延在するマニホールドウエットシール構造は、該板の該一方の面上に前記延在マニホールドウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そして該板の他方の面においては該板の他方の面に固着された延在マニホールドウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池ユニットからなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【請求項25】 セパレータープレートが約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項26】 セパレータープレートの1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さの加圧シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項27】 ウエットシールの巾が約1/4～約3/4インチである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項28】 上記アノードに面した側のセパレータープレートがニッケウおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【請求項29】 電極が固体イオン導体／固体酸化物化合物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項30】 電解質がアルカリ金属カルボン酸塩からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項31】 電解質がカーボネートテープおよびマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている請求項30の燃料電池スタック。

【請求項32】 セパレータープレートの1つの面上の偏平な周囲のウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該セパレータープレートの上記1つの面上に該延長した周囲のマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、該セパレータープレートの他の面上では、該プレートは該セパレーターの上記他の面に固定さ

れた上記延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなり、該セバレータースプレートの上記1つの面上の該延長したマニホールドウエットシール構造は、該セバレータースプレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セバレータースプレートの加圧成型物からなり、および該セバレータースプレートの他の面上では、該セバレータースプレートの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【請求項33】 上記集電装置が燃料電池スタックの周辺縁部にまで延びている請求項18の燃料電池スタック。

【請求項34】 アノード、セバレータースプレート、およびカソードからなる燃料電池ユニット用サブアセンブリーであって、  
該燃料電池ユニットは上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延びるセバレータースプレートを有し、該セバレータースプレートは、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造を有し、上記あの一ど、上記カソード、および上記セバレータースプレートは各々多数の整列した穿孔を有し、該セバレータースプレートの穿孔は約1インチ未満の巾の、完全に該穿孔の周囲のセバレータースプレートの各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通して上記マニホールドと上記セバレータースプレートの1つの面上のアノードチャンバーとの間に流通させる導管および酸素ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セバレータースプレートの他の面上のカソードチャンバーとの間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セバレータースプレートおよび上記カソードにおける各ユニット燃料電池に、燃料ガスと酸素ガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【請求項35】 封止接合が溶接である請求項34のサブアセンブリー。

【請求項36】 セバレータースプレートとウエットシール構造がウエットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010-約0.050インチであり、巾約1/4-約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セバレータースプレートとの間にある請求項34のサブアセンブリー。

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延びている請求項37のサブアセンブリー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォームされた燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード/電流コレクター/セバレータースプレート/電流コレクター/カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時該電解質と電極との間にウエットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセバレータースプレートの設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター/固形酸化物燃料電池に適用できる。

【0002】

【従来の技術】 一般に、燃料電池電気発生ユニットは、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セバレータースプレートによって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタックユニットをなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよび酸化ガスは双方とも、マニホールドを通して、セバレータースプレートと電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスと酸化ガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および/または最小限にするため、ウエットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウエットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内および結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましからぬ燃料ガスおよび/または酸化ガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生を低下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセバレータースプレートとして必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウエットシール領域における腐食と熱ストレスの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよび酸化ガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式



で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーム用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【従来の技術】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、分離用板は、各々が1セットの分離用板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料は分離用板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントは分離用板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニフォールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニフォールド及び出力マニフォールドに開かれていなければならない。入力マニフォールド及び出力マニフォールドは電池スタックの外面上にクランプされていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニフォールドと電池スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾度に沿ってガスケット内でカーボネートの吸入排出を防止している間、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタックの界面において十分なガスシールを維持するために重大な問題が存在する。電池スタックから金属マニフォールドを絶縁するためのさまざまな組み合わせが使用されてきたが、高温熔融カーボネートの燃料電池操作条件下においてはカーボネートが浸透できないにもかかわらず、ガス密封のスライディングシールを提供すること及び電氣的に絶縁することは困難であり、満足の行く解決は見いだせなかった。マニフォールディング及びシールディングの問題は、多数の電池及び広い平面積を電池スタックに使用する場合、より厳密になる。大多数の電池を使用する場合は、スタックの高さに沿ったシール領域内でカーボネートを動かす電位が増加し、そして電池の平面積が増加する場合は、各成分の線状許容量及び各成分の側面配列は、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタック間の表面のシールを維持するのが極端に困難になる。

【0006】600の電池を含むセルスタックス (cell stacks) は約10フィート (3.048メートル) もの高さになり得るので、外部マニホールド (external manifolds) の剛性 (s

tiffness) が要求されること及びマニホールドをセルスタック (cell stack) 上に押圧するのに必要な締付力の使用といった重大な問題が生じる。セルアセンブリー (cell assembly) とセル操作条件との間の熱勾配、示差熱膨張 (differential thermal expansions)、及びマニホールドに使用される材料の必要な強度のために、精密許容差及び非常に困難な工学的問題点が生じる。

【0007】従来は、個々の熔融カーボネート燃料電池は、分離板 (separator plate) の外面周囲にスペーサーストリップ (spacer strips) を設けてウエットシールを形成するとともに取入れ及び排出マニホールドを形成していた。高温燃料電池のウエットシール部分の環境における様々なシール手段は、以下の米国特許に開示されている。米国特許第4, 579, 788号はウエットシールストリップを粉末冶金技術を利用して製作することを教示している。米国特許第3, 723, 186号は、電解質自体がその周囲の領域にある不活性材料から成り当該電解質とフレーム若しくはハウジングとの間で不活性周辺シールを作っていることを教示している。米国特許第4, 160, 067号は、ウエットシール部分における燃料電池のハウジング若しくはセパレーター上への不活性材料の蒸着 (deposition)、又はこのいずれかに含浸された不活性材料の蒸着を教示している。米国特許第3, 867, 206号は、電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周辺縁端との間におけるウエットシールを教示している。米国特許第4, 761, 348号は、ガス不透過性材料の周辺レールによってガスシール機能を付与しオキシダント及び燃料ガスからアノードとカソードをそれぞれ隔離することを教示している。米国特許第4, 329, 403号は、電極から内部電解質領域への移動に際し、熱膨張係数がより漸進的に変化する電解質組成物を教示している。米国特許第3, 514, 333号は、薄いアルミニウムのシール用ガスケットを用いた高温燃料電池におけるアルカリ金属カーボネートのハウジングを教示している。上記の特許をいずれも、燃料電池スタックにおける内部燃料とオキシダントの周囲のシールを扱ってはいない。

【0008】リン酸燃料電池 (約150℃ないし220℃で作動する) のガスシールを、電池の構成要素の多孔質材料周囲の細孔の炭化ケイ素及び／又は窒化ケイ素でふさぐことによって行うことが米国特許第4, 781, 727号に、また支持板縁端 (substrate plate edge) に透き間のある空間 (interstitial spaces) を設けることによって行うことが米国特許第4, 786, 568号および第4, 824, 739号に、それぞれ教示されている。燃料のみの内部マニホールディング (internal

manifolding) について低温電解槽 (low temperature electrolytic cells) において直面するシール及び腐食の問題の解決、例えば、米国特許第4, 259, 389号に教示されている顆粒状不活性材料のポリテトラフルオロエチレンをもちいた接着、米国特許第3, 012, 086号に教示されているポリエチレンのガスケット、及び米国特許第3, 589, 941号に教示されている“O”リングシール等は、高温熔融カーボネート燃料電池に適しているとはいえない。

【0009】米国特許第4, 510, 213号は、電池ユニットの活性部分 (active portion) と取り囲んでいるトランジションフレーム (transition frame) によって個々の電池のガスコンパートメント (gas compartment) に燃料とオキシダントマニホールドを与え、当該マニホールドはセパレーターも当該電池の電解質タイル (electrolyte tile) も貫通しないことを教示している。このトランジションフレームは隣接する電池間で複雑な絶縁を必要とし、いくつかの独立した複雑な部分から成っている。米国特許第4, 708, 916号は、熔融カーボネート燃料電池に関する燃料の内部マニホールディング及びオキシダントの外部マニホールディングを教示している。上記熔融カーボネート燃料電池においては、何組かの燃料マニホールドが個々の電池の中央部分及び両末端にある電解質とセパレーターのみではなく電極をも貫通して、短縮された燃料用流路を形成している。末端の燃料マニホールドはセパレータープレート (seperator plate) の厚い縁端壁面部 (edge wall area) にあり、一方、中央部の燃料マニホールドは厚い中央部領域を貫通しており、カーボネートで含浸されたシール用テープ又は独立した円筒状コンジットインサート (conduit insert) はカソードを貫通して延長されている。

【0010】内部のマニホールド化は、電池の対向縁に沿った複数のマニホールド孔を用いたことにより燃料ガスとオキシダントガスとに並流又は向流を与えるように意図されていた。燃料用のこれらマニホールド孔は反対縁に沿った拡大された周辺ウェットシール領域中に配置されていたが、マニホールドは電解液の外部構造が複雑であり、少なくとも1つの電極を通過する。しかしながら、隣接するマニホールド孔は燃料用及びオキシダント用に使用され、これは短いウェットシートを横切る短い通路、ガスの漏出を与え、更に必然的に拡大された周辺シール領域により電池の活性領域の好ましくない減少を与える。例えば、米国特許4, 769, 298を参照されたい。

【0011】同様に、内部マニホールド化の従来の試みでは、電池の4つの全ての縁のそれぞれに、拡大された周辺ウェットシール領域に沿って複数のマニホールド孔

を用いた。しかしながら、前述の様に隣接する燃料及びオキシダント用マニホールド間の短い通路、同様な複雑な構造及び孔により、ガスの漏出を生じ、更に電池の活性領域を減じた。

【0012】燃料としてガス化生成物を用いた場合、炭化水素成分を改質し、燃料電池スタック内の内部改質による燃料内の水素含量を増加することが好ましい。しかしながら、従来の改質触媒は、その活性サイトが炭酸塩の膜によって被覆されるため、熔融炭酸塩電解質により失活することが知られている。 (“Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell”, Michael Tarjanyi, Lawrence Paetsch, Randolph Bernard, Hossin Ghezal-Ayagh, 1985, Fuel Cell Seminar, Tucson, Ariz, May 19-22, 1985, pp. 177-181, 参照)。

【0013】更に、熔融炭酸塩燃料電池の長期の耐久性を損なう別の問題点は、熔融炭酸塩電解質による多孔性アノード構造の変形、流体集積体、分離板等のようなアノード側のハードウェアの腐食、及びそれによる電解質の損失、及びアノードとカソードの溶解による多孔性アノードを通るガスのクロスオーバー、電解質の損失を生じることである。燃料電池に長期間の安定性及び耐久性を与えるために、これらの1または2以上の問題点を解決するための多くの試みがなされてきた。

【0014】燃料電池のアノード室への燃料供給流の水素含量を増加させることは、幾つかの特許に示されている。米国特許3, 266, 938には複数の高温燃料電池を連続的に配置し、それによって、連続配置中の第1の電池のアノード室からの排ガスを電池の外部で吸熱反応により接触改質して追加の水素を生産し、次いで配列中の第2のアノード室に通す。第2の燃料電池のアノード室の排ガスは電池の外部で接触発熱転換反応に付し、水素を生産し、配置中の第3の燃料電池のアノード室に供される。改質及び転換反応は燃料電池の外部で行われ、燃料電池のアノード室への供給燃料により高含量の水素を与える。米国特許4, 522, 894では、接触酸化及び水蒸気改質により、液状炭化水素供給物の水素含量を増加することが教示されている。ここで、酸化によって生じる熱エネルギーは燃料電池外での改質に使用されており、燃料電池のアノード室への燃料供給流中に高い水素含量を与える。

【0015】米国特許3, 488, 226では、液状炭素水素の低温、低圧水蒸気改質により、熔融炭酸塩燃料電池のアノード室用の供給燃料中に水素を増加させることが教示されている。ここで、改質は燃料電池の外部で行われ、燃料電池で生じる熱の熱処理機能として作用する。1つの具体例としては、改質触媒は燃料電池のアノード室内に置くこともできる。また、たの具体例では、燃料電池からの廃熱は水素発生のための吸熱改質反応を維持するのに直接に使用する。米国特許4, 702, 973では、熔融炭酸塩燃料電池用の2室アノード構造が



示されている。ここで、熔融炭酸塩電解質は、水素イオン透過性で電解質不透過性の金属箔によって、汚染された燃料ガス及び改質触媒から隔離される。

【0016】

【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば熔融カーボネートおよび固体導体／固体酸化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側上に接しおよびカソードの反対側上に接する電解質、ならびにひとつの電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離して分離板の片側とアノードの間にアノード容器を形成し、および分離板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離する分離板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、分離板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置および分離板は約同様の外寸を有することができ、燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。分離板は、平坦な末端シール構造を有し、これは分離板の平面から伸びて各分離板のフェイス上の集電装置および／または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、分離板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリーは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリーは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。

【0017】本発明はまた、燃料電池スタック内に炭化水素性 (hydrocarbonaceous) 燃料を再構成するための分離された容器を有する完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供でき、付加的な水素燃料を提供し吸熱再構成化反応のための熱エネルギーを引き出し、これによって燃料電池の発熱電気化学反応による加熱により必要とされる燃料電池スタックの所望する冷却を提供することができる。本発明は特に高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適し、電解質からの再構成化触媒の分離を提供し、これは熔融アルカリカーボネートの場合には容易に触媒の力を無くす。

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター・プレートが、一直線に並ぶ多数のパーホレーション (穿孔) を所望の位置に有している。各セパレーター・プレートの穿孔は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター・プレートの面から該セパレーター・プレートの各面上の集電装置

および／または電極に接触するまで延びていて、セパレーター・プレート／集電装置および／または電極シールを形成し、それが各穿孔を囲んで各穿孔を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、燃料マニホールドとセパレーター・プレートの一面上にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、オキシダント・マニホールドとセパレーター・プレートの反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター・プレートへ同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分 (コネクション) におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター・プレート、集電装置、電極および電解質を通じて形成されている穿孔は、丸、正方形、長方形、三角形、または他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穿孔の各々は単一の穿孔として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ

(縁) を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター・プレートと集電装置および／または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター・プレートと集電装置および／または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係る分離板はプレスした薄い金属板であって、燃料電

池の全作用領域に波状の部分および／又はくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレスによって形成されており、それによって、分離板と、分離板の対抗する両面上のコレクタまたは電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延長したシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード電流コレクタおよび／又はアノードがあり、反対側にカソード電流コレクタおよび／又はカソードがある分離板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【0021】好ましい実施例においては、マニホールドとアノード室とカソード室さらにはリフォーム室の間のガスの流通を与えるための、延長したマニホールドシール構造を通る導通路または穴は、適当な波状にした金属によって形成される開口であるか、あるいは薄板金属または棒状構造を通る穴であってよい。

【0022】本発明は一つのガス導通路を隣接するガス導通路から確実にシールするものであり、それによって高温および腐食性の燃料電池、例えば溶接炭酸塩燃料電池スタックからの、完全に内部でマニホールドしたガスの供給と除去を行うための有効な手段を与える。また本発明の構造を用いることによって、マルチ電池スタックに炭酸塩を供給するための有効で様々な手段も得られる。

【0023】本発明の構造はまた、燃料電池スタックの中に散在する完全内部マニホールドリフォーム室をも与えるものであり、それによってアノード室に高品質化した水素燃料を供給する炭酸水素燃料ガスがリフォームされ、また一方では、リフォーム反応を進め、燃料電池スタックを冷却するための電気化学的に生成された熱エネルギーを有効に利用するものである。

【0024】本発明は燃料電池要素、特に分離板の半組み立て品、アノード電流コレクタおよび／又はアノード、およびカソード電流コレクタおよび／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明の半組み立て品の使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【0025】本発明はまた、内部リフォームを伴う完全内部マニホールド燃料電池スタックを使用する、特に熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池スタックを使用する電気生成方法を与えるものである。

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタ

ック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよび改造チャンバーを提供する電解液と接触するように伸長する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成される電解液とセパレータープレートの間のウェットシールしたセパレータープレート中のくぼみに取り付けられた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実地的なものにしている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料セルスタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレータープレートはそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺かその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレータープレートのくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレータープレート／集電部／カソード集積ユニットのサブアセンブリーをより簡単かつ実的にしている。これらの要素のブレイアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解液へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料セルスタックのアセンブリーをかなり機能的にしている。本発明では、セパレータープレートの一面から伸長する圧縮シール部とセパレータープレートの反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレータープレートを用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はフレキシビリティとレジリエンスを制限して密閉するものである。

【0028】本発明の燃料セルスタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスをセルスタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレータープレートとともにセルのエッジに伸長す



る電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレータープレートと電解液間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解液とセパレータープレートの間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行ってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解液とセパレータープレートとの間ではなくて電解液と電極との間のウェットシールを行う。

【0029】分離プレート、電解液タイル、電極及び電流コレクターにおける調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動するエンドプレートを通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様のエンドプレートを通して排出される。

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、分離プレート周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、電解液タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【0031】各先願の図1に示されるように、電解液20及び分離プレート40は電池の外側端まで延びて、ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池ユニットはアノード26とともに示されており、そのアノードは分離プレート40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。分離プレート40の他面には、カソード27が分離プレート40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解液20及び分離プレート40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領

域が電解液と流体封じ込め用の分離プレートとの間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解液/分離プレートウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、分離プレート40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池ユニットは炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適應することができる。

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシートセパレーター板40は、穿孔30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセパレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセパレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穿孔31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【0033】セパレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレーターシールストリップシール部分43とセパレーターシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解液と電極及び/又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解液の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかり締められる時、セパレーター板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定する

ことを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭素質材料や少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池ユニットは炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適応できる。

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、セルエッジに向けて伸びている。そして、インターセルスペーシングは、炭酸塩テープが熔融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが熔融する前にセルをヒートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えばLiAlO<sub>2</sub>が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が熔融する前である。バインダーが燃え尽きて、セルの温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、熔融炭酸塩は多孔質LiAlO<sub>2</sub>テープ及び電極に吸収される。内部セルスペーシングは、炭酸塩テープが熔融してその間隔が減少するが、室温から作動温度である約650℃までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性と振戻り性によって、セルのシールは更に確実となる。

【0036】図2は、本発明の一態様に従う熔融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池ユニットの斜視分解図である。図2において、40はセパレータプレート、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレータプレート40の両面においてウェットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウェットの周縁部全体にわたってウェットシール43が形成される。周縁部のウェットシール構造43は、セパレータプレート40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレータプレ

ート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、セルの反応チャンパー中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウェットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウェットシール領域46は、セパレータプレート40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面において、集電体及び又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウェットシールを形成する。なお、周縁部のウェットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通り分離板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウェットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウェットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示されている通り分離板の下方面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウェットシールはストレータプレスされたシート金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウェットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウェットシールを形成する。

【0038】分離板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。この分離板は望ましくは非常に薄く、約0.010~0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015~0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタル分離板を使用することが好ましく、第一鉄金



属腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅は分離板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。分離板はタイプ300シリーズのステンレス鋼のような第一鉄合金から二次加工もまたできる。この分離板はガス室非反応性分離器を提供するのと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供するのとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガス的好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有する分離板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平な分離板にもまた適用できる。

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp.(1270 Avenue New York 100 20, NY)による刊行物"Modern Designs For Effective Heat Transfer" 及びTranter Inc.(Wichita Falls, Texas 76307) による"Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger"で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスケット又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタック分離板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接する分離体の間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【0040】我々のセバレータプレートの両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレータプレートの実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレータプレートが示されている。図4に示されているセバレータプレートには4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積のセル、例えば10,000 cm<sup>2</sup> すなわち約34×57 in<sup>2</sup> 程度のセルとするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレータプレート240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノードチャンバーを通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダ

ント供給用マニフォールド型孔225を通過してセバレータプレート240の反対側に供給され、そして、カソードチャンバーを通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様に、電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【0041】図3には、図2に示されたユニットセルを備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミングチャンバーが備えられている。リフォーミングチャンバーは、アノードセバレータ／リフォーマプレート40' とカソードセバレータ／リフォーマプレート40との間に設けられる。セバレータプレート40、カソード27、カソードカレントコレクター28、電解液20、アノード26及びアノード集電装置29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51は、セバレータプレート40の一般的な(general) 平から両方の面上に伸びており接触して電解液20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径はセルのそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の平らな面が一方の側で電解液20とカソード27及び／又はカソード集電装置28との間で接触をし、且つ、電解液20とアノード26及び／又はアノードカレントコレクタ29との間で接触をし、反応ガスのマニフォールドを囲うウェットシールを形成する。セバレータプレート中における伸びている反応ガス用マニフォールド型ウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノードチャンバー又はカソードチャンバーへの流入が阻止される。アノードセバレータ／リフォーマプレート40' は、セバレータプレート40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48' とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセバレータ／リフォーマプレート40' の上面に近接したリフォーマチャンバーはいずれのオキシダントマニフォールドとも連通していないという点においてのみセバレータプレート40と異なる。伸びている反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の側面に

おける反応ガス開口53は、反応ガスのマニホールド50とリフォーマーチャンバーとを連通させる。同様に、カソードセパレーター／リフォーマープレート40'の下側は、伸びている古い燃料用マニホールド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニホールド24とリフォーマーチャンバーとの間をブロック連通させる。このとき、古い燃料用マニホールド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニホールド50とアノードセパレーター／リフォーマープレート40"とカソードセパレーター／リフォーマープレート40'との間に形成されているリフォーマーチャンバーとの間を連通させる。標準的なセパレータープレート40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニホールド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応チャンバーは、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様に、セパレーター／リフォーマープレートを前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセパレーター／リフォーマープレートのサブアセンブリを形成してもよい。

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセパレーター／リフォーマー板40"のすべてのウェットシール領域はカソードセパレーター／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニホールドを板40"と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する伸ばされたウェットシール領域をさらにセパレーター板40上まで伸ばし、セパレーター／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積をより大きくすることができる。所望の場合にリフォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニホールドウェットシール領域と周囲のウェットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニホールドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する電流コレクターと電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前にあらかじめ組み込まれることができる。

【0043】軸方向に複数のリフォーミング室が散在する燃料電池スタックの基本的な構成は、それぞれのリフォーミング室が2つの離れたセパレーター／リフォーマー

ー板により形成され、1つはアノード室に面したセパレーター板の面の外側に位置し、2つめはカソード室に面したセパレーター板の他方の面の外側に位置し、2つのセパレーター／リフォーマー板はそれらの端部分で密封した状態で接合され、リフォーマー室、伸ばされたマニホールドウェットシール構造を通る、反応ガス供給マニホールドとリフォーマー室とを連結する反応ガスと水蒸気の配管、および伸ばされたマニホールドウェットシール構造を通る、燃料ガス供給マニホールドとを連結する水素富化生成ガスの配管を囲い込み、反応ガス、水蒸気、および燃料電池のそれぞれのリフォーマー室からの生成ガスの完全な内部マニホールディングをもたらす。

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然で生じた有機炭化水素物質のガス化によって又は無気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応性炭化水素質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応性ガスマニホールド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニホールド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含有を高める。この方法において、その燃料供給マニホールドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニホールドする能力は、電気化学的ユニット燃料電池を所望により冷却しながらそして高められた水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニホールドに提供しながらそのリフォーム反応を実施するために電気化学的に発生した熱を利用するその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、熔融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素質物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホールドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5～10の電気化学的ユニットセル間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的反応の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレートプレート配置に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応性ガスマニホールドとして内部マニホールドの或る種のものの消化によって広範囲なセパレートプレート配置に適用できる。本発明による内部リフ



ォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてそのエンドプレート（end plate）を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応性ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【0048】電解質／電極及び／又は電流コレクターウェットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレータプレートのアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレータプレートの反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガスケットなしに達成できる。その主要なウェットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を越えて伸びる電流コレクターと間に幾分かのウェットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレータプレートのシール区域間に幾分かのウェットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減んずるためにアルミニウム化できる。

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶融によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶融が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。改質チャンバーの高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシール部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【0050】本発明の電池形状および電池スタックの利点を、主として溶融カーボネート電池質燃料電池に関して述べて来たが、これらは固体酸化物電解質における酸素イオン又は酸素空隙あるいはその双方の移動によって内部の電氣的条件を与える固体導電体／固体電解質燃料電池その他の高温燃料電池に容易に応用することができる。イットリウムでドーピングしたジルコニア、酸化物イオンを伝導する様々なパーブスカイト化合物、および固体陽子導電体（例えばイッテルビウムでドーピングしたバリウム燐膏）等の、多くの適当な固体酸化物電解質が知られている。本発明の燃料電池スタック形状は、特にこれらのタイプの固体導電体／固体酸化物燃料電池において有用である。

【0051】前述の明細書において本発明を一定の好ましい具体例と関連して述べ、例証のために多くの詳細を

述べて来たが、当業者には、本発明に従ってさらに具体例を追加できることが明らかだろう。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一電池ユニットの分解斜視図である。

【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールドプレートの別の実施態様の正面図である。

【符号の説明】

- 20 電解質
- 26 アノード
- 29 アノード集電体
- 40 セパレータプレート
- 30, 31 孔
- 28 カソード集電体
- 27 カソード

【手続補正3】

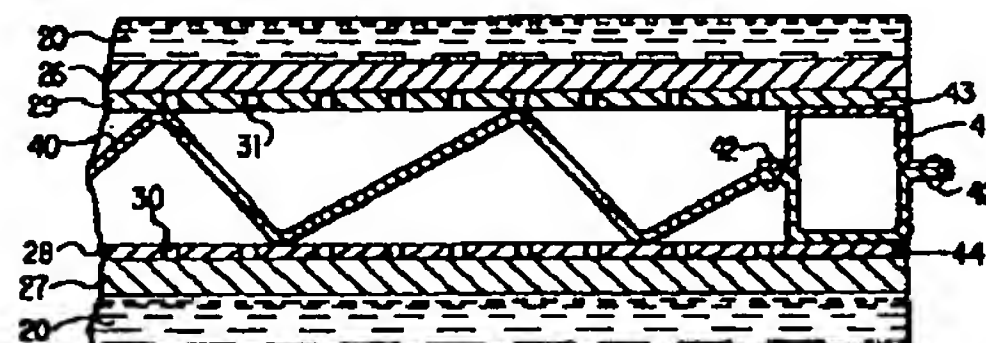
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】全図

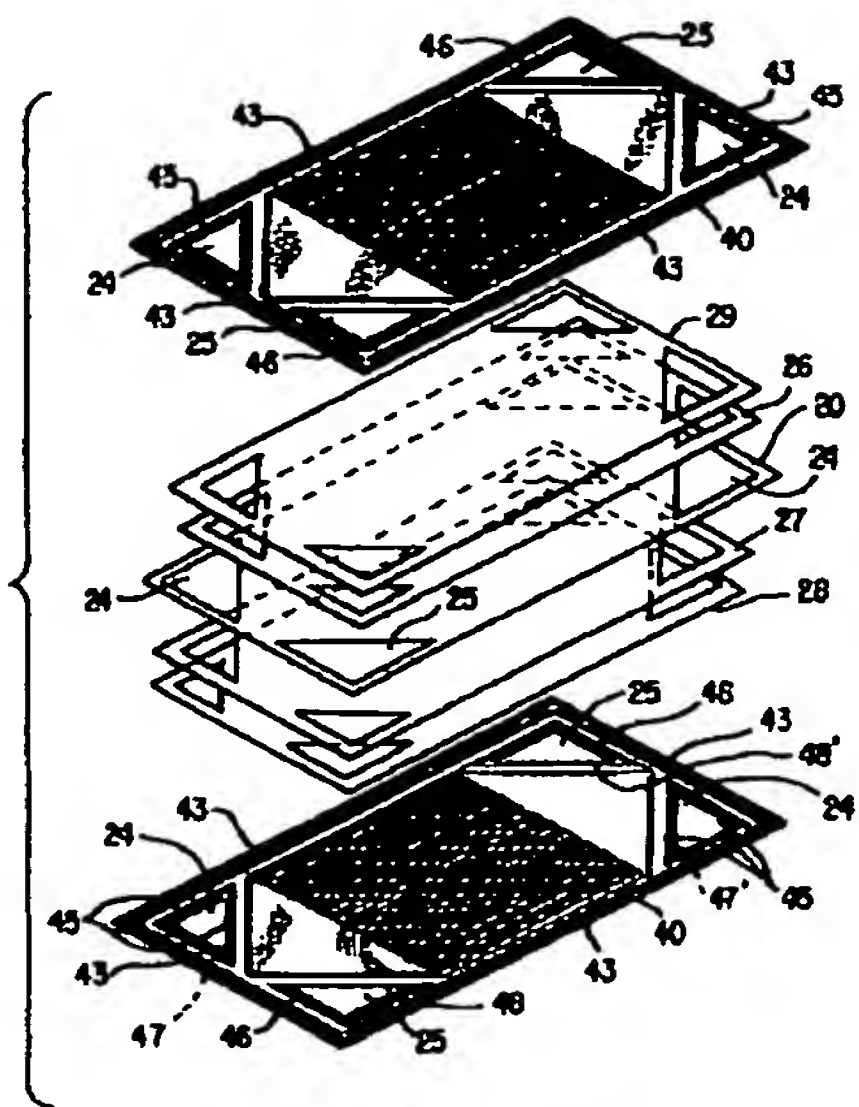
【補正方法】変更

【補正内容】

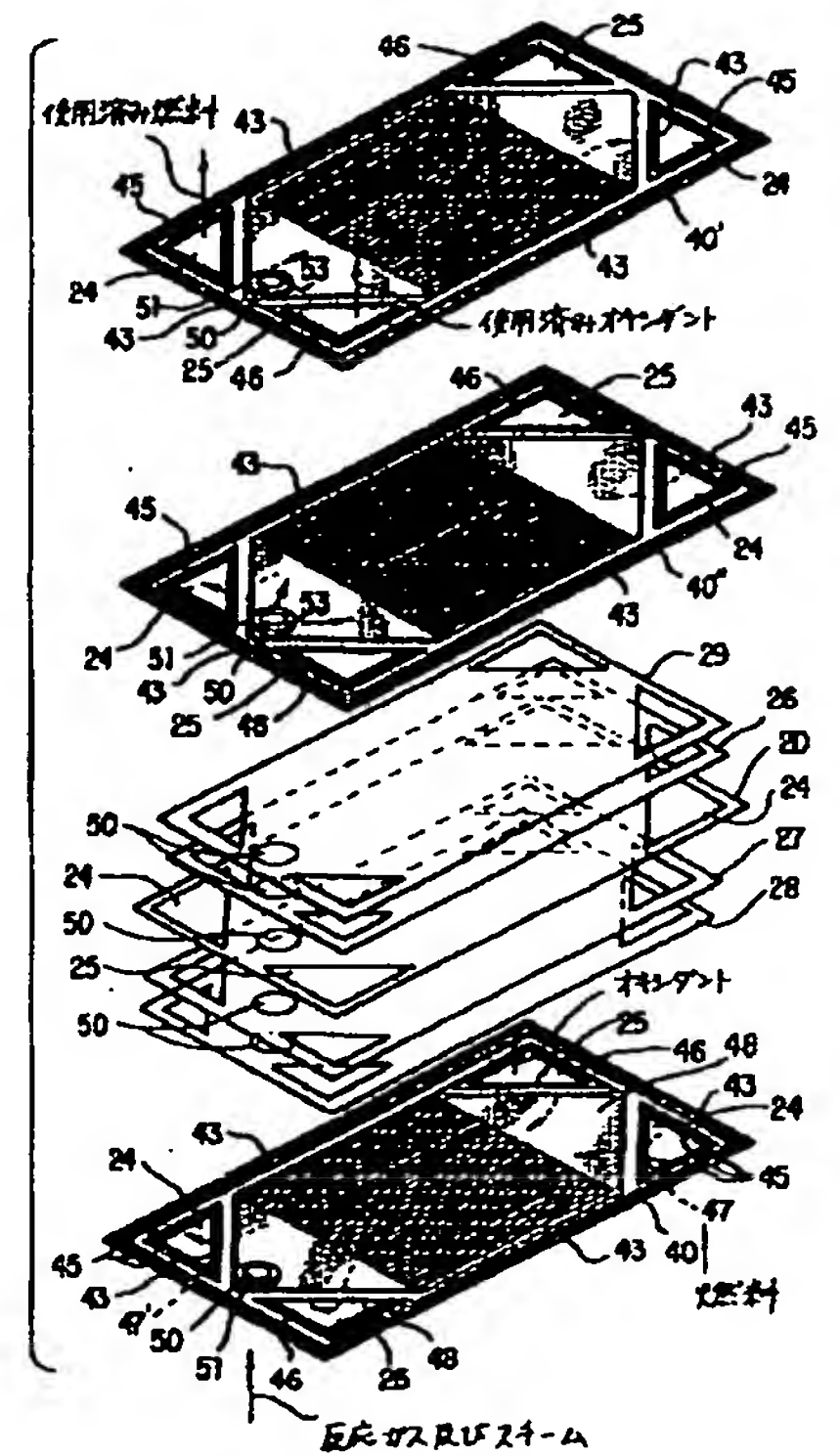
【図1】



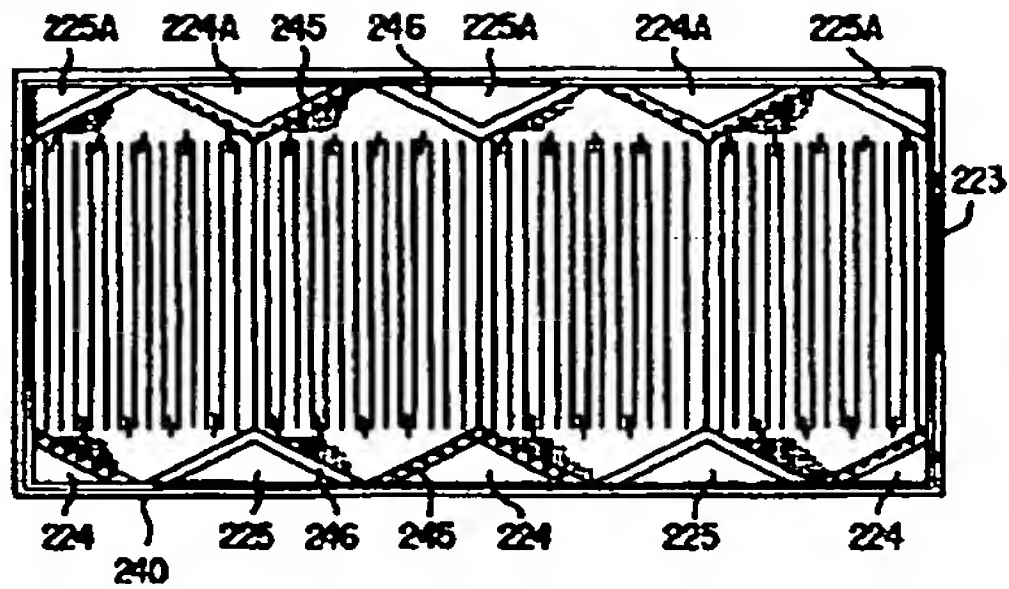
【図2】



【図3】



\*【図4】



\*

【手続補正書】

【提出日】平成9年10月9日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項8

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項8】 前記セパレーター及びセパレーター／リ  
ホーマー板が、約0.010～約0.050インチの厚  
さのプレス成型された金属プレートである請求項1に記  
載の燃料電池スタック。



## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項9

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在周辺ウェットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在周辺ウェットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

## 【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項10

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウェットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在マニホールドウェットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在マニホールドウェットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

## 【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項12

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セバレーター板がニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に記載の燃料電池スタック。

## 【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項16

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在周辺ウェットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在周辺ウェットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含み、前記延在マニホールドウェット

シール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在マニホールドウェットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在マニホールドウェットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

## 【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項17

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セバレーター板との間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

## 【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項18

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項18】 複数の燃料電池単位からなり；各燃料電池単位がアノード及びカソード、そのアノードの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池単位同志を分離してそのセバレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセバレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池単位のカソードのセバレーター対向面との間にカソード室を形成するセバレーター板からなり；そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて；それらの電解質、アノード、カソード及びセバレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、セバレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周辺ウェットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウェットシールを形成し、電解質、アノード、カソード及びセバレーター板はそれぞれ複数の整列した穴を有し、セバレーター板のそれらの穴は、セバレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウェットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウェットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウェットシール

ル構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の一組のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウェットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各単位燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからなる改良。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項20

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つの対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウェットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウェットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマー単位への反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項24

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池単位からなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項25

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項25】 セパレーター板が約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項26

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項26】 セパレーター板の1つの面上の延長したマニホールドウェットシール構造が、該セパレーター板の1つの面上では、該延長したマニホールドウェットシールを形成するための該セパレーター板のプレス成型物からなり、および該セパレーター板の他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウェットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さのプレス成型シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項28

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項28】 上記アノードに面した側のセパレーター板がニッケルおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項32

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項32】 セパレーター板の1つの面上の偏平な周辺のウェットシール構造が、該セパレーター板の1つの面上では、該セパレーター板の上記1つの面上に該延在した周辺のマニホールドウェットシールを形成するための該セパレーター板のプレス成型物からなり、該セパレーター板の他の面上では、該板は該セパレーターの上記他の面に固定された上記延在周辺のマニホールドウェットシールを形成するプレス成型シート金属成型物からなり、該セパレーター板の上記1つの面上の該延在マニホールドウェットシール構造は、該セパレーター板の1つの面上では、該延在マニホールドウェットシールを形成するための該セパレーター板のプレス成型物からなり、および該セパレーター板の他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延在マニホールドウェットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項34

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項34】 アノード、セパレータープレート、お



よびカソードからなる燃料電池単位用サブアセンブリーであって、

該燃料電池単位は上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延在するセパレーター板を有し、該セパレーター板は、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウェットシール構造を有し、上記アノード、上記カソード、および上記セパレーター板は各々多数の整列した穴を有し、該セパレーター板の穴は約1インチ未満の巾の、完全に該穴の周囲のセパレーター板の各面から延在する偏平な周辺のウェットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延在マニホールドウェットシール構造を通して上記マニホールドと上記セパレーター板の1つの面上のアノード室との間に流通させる導管およびオキシダントガスを上記延在マニホールドウェットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セパレーター板の他の面上のカソード室との間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セパレーター板および上記カソードにおける各単位燃料電池に、燃料ガスとオキシダントガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【手続補正15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項36

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項36】 セパレーター板とウェットシール構造がウェットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010～約0.050インチであり、巾約1/4～約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【手続補正16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項37

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セパレーター板との間にある請求項34のサブアセンブリー。

【手続補正17】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項38

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延在している請求項37のサブアセンブリー。

【手続補正18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正内容】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォーム式燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード／集電体／セパレーター板／集電体／カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時刻電解質と電極との間にウェットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセパレーター板の設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター／固形酸化物燃料電池に適用できる。

【手続補正19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0002

【補正方法】変更

【補正内容】

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池電気発生単位は、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セパレーター板によって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタック単位をなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよびオキシダントガスは双方とも、マニホールドを通して、セパレーター板と電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスとオキシダントガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および／または最小限にするため、ウェットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウェットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内および結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましからぬ燃料ガスおよび／またはオキシダントガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の低下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセパレーター板として必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウェットシール領域における腐食と熱ストレ

スの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【手続補正20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0003

【補正方法】変更

【補正内容】

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよびオキシダントガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーム用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【手続補正21】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0004

【補正方法】変更

【補正内容】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、セパレーター板は、各々が1セットのセパレーター板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料はセパレーター板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントはセパレーター板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【手続補正22】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0005

【補正方法】変更

【補正内容】

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニフォールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニフォールド及び出力マニフォールドに開かれていなければならない、入力マニフォールド及び出力マニフォールドは電池スタックの外面上にクランプされていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニフォールドと現地スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾斜に沿ってガスケット内で

【手続補正23】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】

【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば熔融カーボネイトおよび固体導体／固体酸化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側上に接しおよびカソードの反対側上に接する電解質、ならびにひとつの電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離してセパレーター板の片側とアノードの間にアノード容器を形成し、およびセパレーター板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離するセパレーター板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、セパレーター板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置およびセパレーター板は約同様の外寸を有することができ、燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。セパレーター板は、平坦な末端シール構造を有し、これはセパレーター板の平面から伸びて各セパレーター板のフェイス上の集電装置および／または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、セパレーター板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリーは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリーは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。

【手続補正24】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正内容】

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター板が、一直線に並ぶ多数の穴を所望の位置に有している。各セパレーター板の穴は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター板の面から該セパレーター板の各面上の集電装置および／または電極に接触するまで延びていて、セパレーター板／集電装置および／または電極シールを形成し、それが各穴を囲んで各穴を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマ



ニホールド・シール構造を通じて導管または穴は、燃料マニホールドとセパレーター板の一面上にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管または穴は、オキシダント・マニホールドとセパレーター板の反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【手続補正25】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正内容】

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター板へ同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分（コネクション）におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター板、集電装置、電極および電解質を通じて形成されている穴は、丸、正方形、長方形、三角形、また他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穴の各々は単一の穴として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ（縁）を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター板と集電装置および／または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター板と集電装置および／または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【手続補正26】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正内容】

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係るセパレーター板はプレス成型した薄い金属板であって、燃料電池の全作用領域に波状の部分および／又はくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレス成形によって形成されており、それによってセパレーター板と、セパレーター板の対抗する両面上の集電体または電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延在するシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード集電体および／又はアノードがあり、反対側にカソード集電体および／又はカソードがあるセパレーター板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【手続補正27】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】本発明は燃料電池要素、特にセパレーター板のサブアセンブリー、アノード集電体および／又はアノード、およびカソード集電体および／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明のサブアセンブリーの使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また、様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【手続補正28】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

【補正内容】

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよびリホーミング室を提供する電解液と接触するように延在する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成

される電解液とセパレーター板の間のウェットシールしたセパレーター板中のくぼみに取り付けられた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレーター板の周辺部に延在する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実際のなものにしている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【手続補正29】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正内容】

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料電池スタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレーター板はそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺がその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレーター板のくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレーター板／集電部／カソード集積単位のサブアセンブリーをより簡単かつ実用的にしている。これらの要素のブレイアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解質へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料電池スタックのアセンブリー作業をかなり促進している。本発明では、セパレーター板の一面から伸長する圧縮シール部とセパレーター板の反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレーター板を用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はわずかな柔軟性及び弾性で密閉を可能とするものである。

【手続補正30】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

【補正内容】

【0028】本発明の燃料電池スタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスを電池スタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレーター板とともに電池のエッジに伸長する電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレーター板と電解質

間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解質とセパレーター板の間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行なってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレーター板の周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解質とセパレーター板との間ではなくて電解質と電極との間のウェットシールを行う。

【手続補正31】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正内容】

【0029】セパレーター板、電解質タイル、電極及び集電体における調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動する端板を通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様の端板を通して排出される。

【手続補正32】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、セパレーター板周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、電解質タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【手続補正33】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0031

【補正方法】変更

【補正内容】

【0031】各先願の図1に示されるように、電解質20及びセパレーター板40は電池の外側端まで延びて、



ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池単位はアノード26とともに示されており、そのアノードはセバレーター板40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。セバレーター板40の他面には、カソード27がセバレーター板40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解質20及びセバレーター板40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領域が電解質と流体封じ込め用のセバレーター板との間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解質／セバレーター板ウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、セバレーター板40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池単位は炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適應することができる。

【手続補正34】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

【補正内容】

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシート状セバレーター板40は、穴30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセバレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセバレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセバレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穴31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセバレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【手続補正35】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0033

【補正方法】変更

【補正内容】

【0033】セバレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セバレーターシールストリップシール部分43とセバレーターシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各

々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セバレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解質と電極及び／又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セバレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解質の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかりと締められる時、セバレーター板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセバレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【手続補正36】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0034

【補正方法】変更

【補正内容】

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セバレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定することを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭素質材料の少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池単位は炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適應できる。

【手続補正37】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、電池エッジに向けて伸びている。そして、電池間の間隙は、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前に電池をヒ

ートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えば $\text{LiAlO}_2$ が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、電池の温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、溶融炭酸塩は多孔質 $\text{LiAlO}_2$ 、テープ及び電極に吸収される。電池間の間隙は、炭酸塩テープが溶融してその間隙が減少するが、室温から作動温度である約 $650^\circ\text{C}$ までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性と捩り性によって、セルのシールは更に確実となる。

【手続補正38】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0036

【補正方法】変更

【補正内容】

【0036】図2は、本発明の一態様に従う溶融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池単位の斜視分解図である。図2において、40はセパレーター板、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレーター板40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレーター板40の両面においてウェットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウェットの周縁部全体にわたってウェットシール43が形成される。周縁部のウェットシール構造43は、セパレーター板40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレーター板40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレーター板40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、電池の反応室中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウェットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウェットシール領域46

は、セパレーター板40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレーター板40の両面において、集電体及び又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウェットシールを形成する。なお、周縁部のウェットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【手続補正39】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0037

【補正方法】変更

【補正内容】

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通りセパレーター板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウェットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウェットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示されている通りセパレーター板の下面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウェットシールはストレートプレスされたシール金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウェットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウェットシールを形成する。

【手続補正40】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0038

【補正方法】変更

【補正内容】

【0038】セパレーター板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。このセパレーター板は望ましくは非常に薄く、約0.010～0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015～0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタルのセパレーター板を使用することが好ましく、第一鉄金属腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅はセパレーター板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。セパレーター板はタイプ300シリーズのステンレス鋼の



ような第一鉄合金から二次加工もまたできる。このセバレーター板はガス室非反応性セバレーターを提供することと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供することとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガスの好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有するセバレーター板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平なセバレーター板にもまた適用できる。

【手続補正41】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0039

【補正方法】変更

【補正内容】

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp. (1270 Avenue New York 10020, NY) による刊行物 "Modern Designs For Effective Heat Transfer" 及びTranter Inc. (Wichita Falls, Texas 76307) による "Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger" で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスケット又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタックのセバレーター板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接するセバレーターの間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【手続補正42】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0040

【補正方法】変更

【補正内容】

【0040】我々のセバレーター板の両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレー

ター板の実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレーター板が示されている。図4に示されているセバレーター板には4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積の単位、例えば10,000 cm<sup>2</sup> すなわち約34×57 in<sup>2</sup> 程度の単位とするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレーター板240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノード室を通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダント供給用マニフォールド型孔225を通過してセバレーター板240の反対側に供給され、そして、カソード室を通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解質と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様にして、電解質と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【手続補正43】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0041

【補正方法】変更

【補正内容】

【0041】図3には、図2に示された単位電池を備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミング室が備えられている。リフォーミング室は、アノードセバレーター／リフォーマー板40とカソードセバレーター／リフォーマー板40との間に設けられる。セバレーター板40、カソード27、カソード集電体28、電解質20、アノード26及びアノード集電体29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51は、セバレーター板40の一般的な (general) 平から両方の面上に伸びており接触して電解質20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径は電池のそれぞれの部品のもと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の平らな面が一方の側で電解質20とカソード27及び／又はカソード集電体28との間で接触をし、且つ、電解質20とアノード26及び／又

はアノード集電体29との間で接触をし、反応ガスのマニフォルドを囲うウェットシールを形成する。セパレーター板中において延在している反応ガス用マニフォルドウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノード室又はカソード室の流入が阻止される。アノードセパレーター／リフォーマー板40''は、セパレーター板40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセパレーター／リフォーマー板40''の上面に近接したリフォーマー室はいずれのオキシダントマニフォルドとも連通していないという点においてのみセパレーター板40と異なる。延在している反応ガスのマニフォルドウェットシール領域51の側面における反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォルド50とリフォーマー室とを連通させる。同様にして、カソードセパレーター／リフォーマー板40'の下側は、延在している使用済燃料用マニフォルド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォルド24とリフォーマー室との間をブロック連通させる。このとき、使用済燃料用マニフォルド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォルド50とアノードセパレーター／リフォーマー板40''とカソードセパレーター／リフォーマー板40'との間に形成されているリフォーマー室との間を連通させる。標準的なセパレーター板40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォルド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応室は、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様にして、セパレーター／リフォーマー板を前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセパレーター／リフォーマー板のサブアセンブリを形成してもよい。

【手続補正44】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0042

【補正方法】変更

【補正内容】

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセパレーター／リフォーマー板40''のすべてのウェットシール領域はカソードセパレーター／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニフォルドを板40''と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する延在ウェットシール領域をさらにセパレーター板40上まで伸ばし、セパレーター／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積を

より大きくすることができる。所望の場合にリフォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニフォルドウェットシール領域と周囲のウェットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニフォルドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する集電体と電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前にあらかじめ組み込まれることができる。

【手続補正45】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0044

【補正方法】変更

【補正内容】

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然の有機炭化水素物質のガス化によって又は嫌気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応用炭化水素質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【手続補正46】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0045

【補正方法】変更

【補正内容】

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応用ガスマニフォルド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニフォルド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含量を高める。この方法において、その燃料供給マニフォルドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【手続補正47】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0046

【補正方法】変更

【補正内容】

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニフォルドする能力は、電気化学的単位燃料電池を所望により冷却しながらそして高濃度水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニフォルドに提供しながらそのリフォーム反応を実



施するために電気化学的に発生した熱を利用するその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、熔融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素質物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホールドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5～10の電気化学的単位電池間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的反応の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【手続補正48】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0047

【補正方法】変更

【補正内容】

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレーター板の形状に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応用ガスマニホールドとして内部マニホールドの或るものを指定することによって多様なセパレーター板の形状に適用できる。本発明による内部リフォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてその端板(end plate)を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応用ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【手続補正49】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正内容】

【0048】電解質／電極及び／又は集電体ウェットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレーター板のアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレーター板の反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガスケットなしに達成できる。その主要なウェットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を超えて伸びる集電体と間に幾分かのウェットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレーター板のシール区域間

に幾分かのウェットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減ずるためにアルミニウム化できる。

【手続補正50】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正内容】

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶融によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶融が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。リホーム室の高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシール部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【手続補正51】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図面の簡単な説明

【補正方法】変更

【補正内容】

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一の電池単位の分解斜視図である。

【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールド板の別の実施態様の正面図である。

【符号の説明】

20	電解質
26	アノード
29	アノード集電体
40	セパレーター板
30, 31	穴
28	カソード集電体
27	カソード

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**